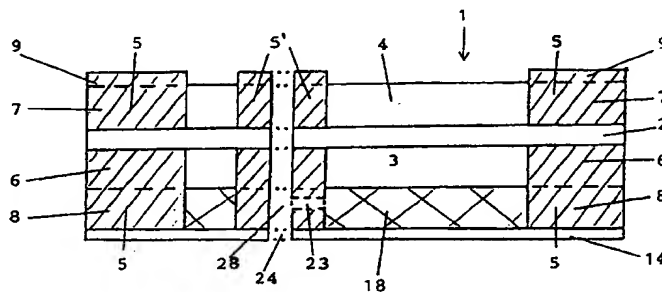


**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<b>(51) Internationale Patentklassifikation<sup>6</sup> :</b> <b>H01M 8/02, 8/24</b>		<b>A1</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:</b> <b>WO 98/33225</b>
			<b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 30. Juli 1998 (30.07.98)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP98/00479		<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).	
<b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 29. Januar 1998 (29.01.98)			
<b>(30) Prioritätsdaten:</b> 197 03 214.1      29. Januar 1997 (29.01.97)      DE			
<b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> MAGNET-MOTOR GESELLSCHAFT FÜR MAGNETMOTORISCHE TECHNIK MBH [DE/DE]; Petersbrunner Strasse 2, D-82319 Starnberg (DE).			
<b>(72) Erfinder; und</b>		<b>Veröffentlicht</b>	
<b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> KOSCHANY, Arthur [DE/DE]; Lindenberg 56, D-82343 Pöcking (DE). SCHWESINGER, Thomas [DE/DE]; Zur Fährle 8, D-94356 Kirchroth (DE).		<i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	
<b>(74) Anwalt:</b> KLUNKER, SCHMITT-NILSON, HIRSCH; Winzerstrasse 106, D-80797 München (DE).			

**(54) Title:** MEMBRANE-ELECTRODE UNIT WITH AN INTEGRATED WEAR RING, AND PRODUCTION PROCESS**(54) Bezeichnung:** MEMBRAN-ELEKTRODENEINHEIT MIT INTEGRIERTEM DICHTRAND UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG**(57) Abstract**

The invention relates to a membrane-electrode unit (1) with an integrated wear ring for fuel cells provided with a polymer electrolyte membrane (2), the anode (3) being mounted on one face thereof and the cathode on the other face (4). The unit (1) is made of a multilayer material containing both anode and cathode material, between which is inserted the material of the polymer electrolyte membrane, from which fragments of appropriate size are separated, while in said fragments, the both sides of the membrane are entirely covered by the electrodes. On the periphery of the fragment is mounted a wear ring (5) in such a way that the latter (5) passes through a peripheral area (6', 7') of at least one electrode (3, 4) and adheres to that membrane portion which is adjacent to the peripheral area, and/or to the front faces of at least one electrode and the membrane.

### (57) Zusammenfassung

Eine Membran-Elektrodeneinheit (1) mit integriertem Dichtrand für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit einer Polymerelektrolytmembran (2), einer an einer Oberfläche der Membran angeordneten Anode (3) und einer an der anderen Oberfläche der Membran angeordneten Kathode (4) wird hergestellt aus einem Schichtmaterial aus Anodenmaterial, Kathodenmaterial und dazwischen angeordnetem Polymerelektrolytmembran-Material, von dem Stücke geeigneter Größe abgetrennt werden, wobei in den abgetrennten Stücken die Membran an beiden Seiten vollständig von den Elektroden bedeckt ist. Am Umfang des Teilstücks wird ein Dichtrand (5) dergestalt ausgebildet, daß der Dichtrand (5) einen Randbereich (6', 7') mindestens einer der Elektroden (3, 4) durchdringt und an dem dem Randbereich benachbarten Bereich der Membran haftet und/oder der Dichtrand an den Stirnflächen mindestens einer der Elektroden und den Stirnflächen der Membran haftet.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshjan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

MEMBRAN-ELEKTRODENEINHEIT MIT  
INTEGRIERTEM DICHTRAND UND VERFAHREN  
ZU IHRER HERSTELLUNG

5

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Membran-Elektrodeneinheit für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit einer Polymerelektrolytmembran, einer an einer Oberfläche der Membran angeordneten Anode und einer an der anderen Oberfläche der Membran angeordneten Kathode, sowie ein Verfahren zur Herstellung der Membran-Elektrodeneinheit.

10

15

20

25

30

35

Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen, wie sie üblicherweise zur Erzeugung von elektrischem Strom verwendet werden, enthalten eine Anode, eine Kathode und eine dazwischen angeordnete Ionenaustauschermembran. Eine Mehrzahl von Brennstoffzellen bildet einen Brennstoffzellenstapel, wobei die einzelnen Brennstoffzellen durch als Stromsammler wirkende bipolare Platten voneinander getrennt werden. Die anodenseitige bipolare Platte einer Zelle ist dabei gleichzeitig die kathodenseitige bipolare Platte der Nachbarzelle. Zur Erzeugung von Elektrizität wird ein Brenngas, z.B. Wasserstoff, in den Anodenbereich und ein Oxidationsmittel, z.B. Luft oder Sauerstoff, in den Kathodenbereich eingebracht. Anode und Kathode enthalten in den mit der Polymerelektrolytmembran in Kontakt stehenden Bereichen jeweils eine Katalysatorschicht. In der Anodenkatalysatorschicht wird der Brennstoff unter Bildung von Kationen und freien Elektronen oxidiert, in der Kathodenkatalysatorschicht wird das Oxidationsmittel durch Aufnahme von Elektronen reduziert. Alternativ können die beiden Katalysatorschichten auch an den entgegengesetzten Seiten der Membran aufgebracht werden. Die Struktur aus Anode, Membran, Kathode und den entsprechenden Katalysatorschichten wird als Membran-Elektrodeneinheit bezeichnet. Die anodenseitig gebildeten Kationen wandern durch die Ionenaustauschermembran zur Kathode und reagieren mit dem reduzierten Oxidationsmittel, wobei, wenn Wasserstoff als Brenngas und Sauerstoff als Oxidationsmittel verwendet werden, Wasser entsteht. Die bei der Reaktion von

5 Brenngas und Oxidationsmittel entstehende Wärme wird mittels Kühlung abgeführt. Zur besseren Verteilung der Reaktionsgase sowie gegebenenfalls zur Stützung der Membranelektrodeneinheit können zwischen Elektroden und bipolaren Platten Gasführungsstrukturen, z.B. Gitternetze, vorgesehen werden.

10 Nach dem Einbau in eine Brennstoffzelle steht die Membran-Elektrodeneinheit anodenseitig mit dem Brenngas und kathodenseitig mit dem Oxidationsmittel in Kontakt. Die Polymerelektrolytmembran trennt die Bereiche, in denen sich Brenngas bzw. Oxidationsmittel befindet, voneinander. Um zu verhindern, daß Brenngas und Oxidationsmittel direkt miteinander in Kontakt kommen können, was explosionsartige Reaktionen hervorrufen könnte, muß eine verlässliche Abdichtung der Gasräume voneinander gewährleistet sein. Hierbei stellt insbesondere die Abdichtung gegen das Brenngas Wasserstoff, das hervorragende Diffusions-  
15 eigenschaften besitzt, ein Problem dar.

20 Um zu verhindern, daß in der Brennstoffzelle entlang den Rändern der Membran ein Gasaustausch stattfinden kann, geht man herkömmlicherweise folgendermaßen vor: bei der Herstellung herkömmlicher Membran-Elektrodeneinheiten werden die Abmessungen für Membran und Elektroden so gewählt, daß bei dem sandwichartigen Anordnen der Membran zwischen den Elektroden die Membran an jeder Seite ein gutes Stück über die Fläche der Elektroden hinausragt. Die  
25 herkömmliche Membran-Elektrodeneinheit weist also eine Membran auf, deren Randbereiche nicht von Elektrodenmaterial bedeckt sind. Um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit werden auf beiden Seiten der Membran flache Dichtungen, z.B. aus gerecktem PTFE, angebracht, die die überstehenden Bereiche der Membran bedecken. Bei einer quadratischen Membran-Elektrodeneinheit beispielsweise werden beidseitig der  
30 Membran quadratische Rahmen dergestalt aufgepreßt und/oder verklebt, daß sie die überstehenden Bereiche der Membran mindestens zum Teil bedecken. Diese herkömmlichen Membran-Elektrodeneinheiten haben zum einen den Nachteil, daß sie recht aufwendig in ihrer Herstellung



sind, da Anode, Kathode und Membran jeweils separat zugeschnitten werden und anschließend für jede einzelne Membran-Elektrodeneinheit paßgenau zusammengesetzt werden müssen. Eine preisgünstige Herstellung von Membran-Elektrodeneinheiten als Quadratmeterware ist nicht  
5 möglich. Ebenso müssen die Dichtungen separat zugeschnitten und dann paßgenau angebracht werden.

Ein weiterer Nachteil der herkömmlichen Membran-Elektrodeneinheiten zeigt sich beim Einbau in eine Brennstoffzelle. In der Brennstoffzelle  
10 muß mindestens auf der Anodenseite zwischen Membran-Elektrodeneinheit und der die Zelle begrenzenden Bipolarplatte ein gasdichter Raum ausgebildet werden. Üblicherweise wird hier mit Dichtungsringen oder -Streifen zwischen Membran-Elektrodeneinheit und bipolarer Platte gearbeitet, wobei jeweils mehrere Zellen in Reihe zusammengespannt  
15 werden und eine gemeinsame Brenngaszufuhr erhalten. Erst beim Zusammenspannen werden die gasdichten Räume ausgebildet. Tritt ein Leck auf, ist dieses schwer lokalisierbar, und es kann auch nicht eine Zelle allein, sondern nur die zusammengespannte Einheit, in der das Leck auftritt, entfernt werden. Dies ist mit erheblichem Arbeitsaufwand  
20 und Ausfall an Brennstoffzellen-Nutzungsdauer verbunden.

Gelegentlich wird darauf verzichtet, die Membran-Elektrodeneinheit mit einem aufgepreßten Dichtrahmen zu versehen. Das Abdichten geschieht dann beim Einbau in eine Brennstoffzelle, indem zwischen dem nicht  
25 von Elektrodenmaterial bedeckten Teil der Membran und der angrenzenden Bipolarplatte ein Dichtring mit eingespannt wird. In beiden Fällen ergibt sich hierbei ein Spalt zwischen Elektrodenmaterial und Dichtung, was die Anordnung empfindlich gegenüber mechanischen Verletzungen macht, insbesondere bei dünnen oder spröden Membranen. Außerdem besteht die Gefahr, daß die Membran-Elektrodeneinheit nicht völlig eben  
30 eingespannt wird, so daß die Membran mit dem metallischen Stromableiter in Kontakt kommt. Dabei kann das Metall von einer sauren Membran teilweise gelöst werden. Die Metallionen treten in die Membran ein, wodurch deren Leitfähigkeit leidet.

Die vorliegende Erfindung erlaubt es, die oben angeführten Nachteile zu überwinden.

5 Aufgabe der Erfindung ist es, eine Membran-Elektrodeneinheit für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle bereitzustellen, die an mindestens einer Seite dergestalt mit einer Bipolarplatte verbunden werden kann, daß zwischen Membran und Bipolarplatte ein gasdichter Raum ausgebildet wird.

10 Aufgabe der Erfindung ist es außerdem, eine Membran-Elektrodeneinheit bereitzustellen, bei der die Anordnung Membran-Elektrodeneinheit/Bipolarplatte separat auf Gasdichtheit geprüft werden kann.

15 Aufgabe der Erfindung ist es ferner, ein einfaches, kostengünstiges Verfahren zur Herstellung derartiger Membran-Elektrodeneinheiten bereitzustellen.

20 Die Aufgaben werden gelöst durch die Membran-Elektrodeneinheit gemäß Anspruch 1 und das Verfahren zur Herstellung der Membran-Elektrodeneinheit gemäß Anspruch 14.

Bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung sind in den jeweiligen Unteransprüchen angegeben.

25 Erfindungsgemäß werden zur Herstellung der Membran-Elektrodeneinheit nicht Anode, Kathode und Membran separat zugeschnitten und die einzelnen Teile dann miteinander verbunden, sondern es wird ein Schichtmaterial aus Anodenmaterial, Kathodenmaterial und dazwischenliegendem Membranmaterial hergestellt, beispielsweise mittels eines  
30 Walzverfahrens entsprechend den bei der Papierherstellung verwendeten. Dabei erhält man Quadratmeterware, aus der die einzelnen Membran-Elektrodeneinheiten in einem Arbeitsgang in der gewünschten Größe ausgeschnitten, ausgestanzt oder anderweitig abgetrennt werden können. Eine so erhaltene Membran-Elektrodeneinheit enthält, abgesehen von der

5       Stirnfläche, keine freie Membranfläche, vielmehr wird die Membran an beiden Oberflächen vollständig von Anodenmaterial bzw. Kathodenmaterial bedeckt. Falls gewünscht, können in der Membran-Elektroden-  
einheit Durchführungen ausgebildet werden, ebenfalls in einem Arbeits-  
gang.

10       Die zur Herstellung der erfindungsgemäßen Membran-Elektroden-  
einheit verwendeten Membranen, Elektroden und Katalysatoren an sich können konventionelle Materialien sein, wie sie üblicherweise für entsprechende  
15       Zwecke eingesetzt werden. Als Elektroden, d.h. Anoden und Kathoden, kommen beispielsweise Diffusionselektroden aus Kohlepapier oder graphitisierten Geweben in Frage, die einen Katalysator enthalten, der parallel und auch senkrecht zur Elektrodenfläche beliebig verteilt sein kann. Anstelle von Kohlepapier oder graphitisierten Geweben können  
20       aber auch Kohlefaservliese verwendet werden. Als Katalysator kann beispielsweise Platin auf Kohlenstoff verwendet werden. Die Elektroden können nur die Katalysatorschicht, einen Teil der Diffusionsschicht oder die gesamte Diffusionsschicht enthalten. Alternativ kann der Katalysator auch auf den Oberflächen der Membran angebracht sein. Als  
25       Membranen werden vorteilhaft die üblichen ionenleitenden Polymere, beispielsweise Nafion oder ein sulfoniertes Polyetheretherketonketon (PEEKK, erhältlich von Hoechst), verwendet.

30       Die Membran-Elektroden-einheiten in Form von Quadratmeterware können hergestellt werden unter Verfahrensbedingungen wie die konventionellen, einzelnen Membran-Elektroden-einheiten. Im Falle der Erfindung werden je eine Bahn aus Elektrodenmaterial an jeder Oberfläche einer Bahn einer in ihrer  $H^+$ -Form vorliegenden Polymerelektrolytmembran angeordnet und anschließend bevorzugt bei Drücken von  
35       etwa 30 bar bis zu 500 bar und Temperaturen bis zu 250°C aufgewalzt. Typisch sind Drücke zwischen etwa 80 und 250 bar und Temperaturen zwischen etwa 80 und 120° C. Wenn das Elektrodenmaterial die katalytisch aktive Schicht enthält, muß es dergestalt auf die Membran aufge-

walzt werden, daß die katalytisch aktive Schicht in Kontakt mit der Membran steht.

5 Alternativ kann auch zuerst eine Elektrode und in einem zweiten Arbeitsgang die zweite Elektrode aufgebracht werden.

10 Aus diesem Membran-Elektroden-Schichtmaterial werden in einem Arbeitsgang Membran-Elektrodeneinheiten in der gewünschten Größe zugeschnitten, und zumindest um den Umfang einer jeden Membran-Elektrodeneinheit wird ein Dichtrand ausgebildet, der die Membran und  
15 die Elektrode bzw. die Elektroden gasdicht miteinander verbindet und der außerdem gasdicht mit einer Bipolarplatte verbunden werden kann. Der hierin verwendete Begriff "Membran-Elektrodeneinheit" im Sinne der Erfindung bezeichnet also Schichtmaterialstücke aus Anoden-,  
20 Kathoden- und Membranmaterial ohne oder mit Dichtrand, wobei abgesehen von der Stirnfläche im wesentlichen keine nicht von Elektrodenmaterial bedeckte Membranfläche vorhanden ist. Der Dichtrand wird hergestellt, indem man ein Dichtmittel, beispielsweise einen Kunststoff oder ein Gemisch von Kunststoffen, in Randbereiche der Elektroden am  
25 Umfang der Membran-Elektrodeneinheit eindringen läßt, so daß die Poren der Elektroden im wesentlichen gefüllt werden und kein Gas mehr durchlassen. Der Kunststoff, bevorzugt ein Thermoplast oder ein aus-  
härthbarer, flüssiger Kunststoff von niedriger Viskosität kann durch Kapillarwirkung in die Elektroden eindringen und anschließend ausge-  
30 härtet werden, oder es kann Kunststoff in flüssiger Form, d.h. geschmolzen, unausgehärtet oder in einem Lösungsmittel gelöst, mit der Elektrode, gegebenenfalls durch Anwendung des erforderlichen Drucks (bevorzugt bis etwa 200 bar) und/oder erhöhter Temperatur in einer geeigneten Vorrichtung verpreßt werden, und die Poren der Elektrode auf diese Weise gefüllt werden. Gegebenenfalls kann vorher evakuiert werden, um Luft aus den Poren zu entfernen und so das Eindringen des Dichtmittels zu erleichtern. Bevorzugte Kunststoffe sind Polyethylene, Polypropylene und Polyamide sowie Epoxidharze, Silicone und Polyesterharze. Zwecks besserer Benetzung der von Kunststoff zu durch-

5 dringenden Randbereiche der Elektroden können diese vor der Behandlung mit Kunststoff mit einem Lösungsmittel für den Kunststoff benetzt oder an der Oberfläche angefräst werden. Auch ein teilweises Oxidieren der entsprechenden Bereiche der Kohlenstoffmaterialien der Elektroden kann vorteilhaft sein.

10 Der so um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit ausgebildete Dichtrand verhindert ein Austreten von Reaktionsgasen aus den Elektroden "radial" nach außen durch "Verstopfen" der Gaswege im Randbereich der Elektroden und sorgt außerdem für eine gasdichte Verklebung und Anhaftung des Randbereichs der Elektroden mit dem angrenzenden Membranbereich.

15 Derartige Dichtungen können in allen Bereichen der Membran-Elektrodeneinheit ausgebildet werden, in denen Ränder auftreten, z.B. auch bei Durchführungen durch die aktiven Flächenbereiche der Membran-Elektrodeneinheit, wie sie häufig nötig sind zur Zuleitung von Gasen, Wasser oder für Spannschrauben.

20 Alternativ kann ein Dichtrand ausgebildet werden, indem man um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheiten an deren im wesentlichen bündig abschließenden Stirnseiten einen Dichtrahmen anbringt, bzw. Durchführungen ganz oder teilweise mit einem Dichtrahmen auskleidet. Als Material für den Dichtrahmen kommen bevorzugt Kunststoffe oder  
25 Kunststoffgemische in Frage, insbesondere Thermoplaste wie Polyethylene, Polypropylene und Polyamide, oder aushärtbare Kunststoffe wie Epoxidharze, Silicone oder Polyesterharze. Der Dichtrahmen wird so angebracht, daß er sich fest mit den Stirnflächen der Membran oder den Stirnflächen von mindestens einer Elektrode und Membran  
30 verbindet und gasdicht an ihnen haftet.

Die erforderlichen Durchführungen können auch unmittelbar im Dichtrand selbst vorgesehen werden.

Auch Mischformen zwischen beiden Dichtrandvarianten, d.h. Dichtränder, die teilweise innerhalb des Elektrodenmaterials und teilweise an den Stirnseiten ausgebildet sind, sind möglich.

5 Die am Umfang und ggf. an Durchführungen abgedichteten Membran-Elektrodeneinheiten können nun mit bipolaren Platten verbunden werden. In der Regel dürfen bipolare Platten nicht direkt auf den Elektroden aufliegen, sondern es muß zwischen Elektrode und bipolarer Platte ein freier Raum verbleiben, in dem eine Gasführungsstruktur, z.B. ein Netz,  
10 zur besseren Verteilung von Reaktionsgasen über die Oberfläche der Elektrode vorgesehen werden kann. Dieser freie Raum kann dadurch geschaffen werden, indem man den Dichtrand nicht bündig mit der Elektrodenoberfläche abschließen läßt, sondern ihn über die Elektrodenoberfläche überstehend ausbildet. Bei Elektroden mit überstehendem  
15 Dichtrand kann eine ebene bipolare Platte mit dem Dichtrand verbunden, z.B. gasdicht verklebt werden, oder im Brennstoffzellenstapel unter permanentem Druck angepreßt und damit gasdicht werden. Schließt der Dichtrand bündig mit der Elektrodenoberfläche ab, kann eine bipolare Platte verwendet werden, die in dem Bereich, in dem die Gasführungsstruktur angebracht werden soll, dünner ausgebildet ist als in dem Bereich, der mit dem Dichtrand der Membran-Elektrodeneinheit gasdicht verbunden wird. Bipolare Platten, die eine integrierte Gasführungsstruktur enthalten, z.B. Graphitplatten mit eingefrästen Rillen, erfordern  
20 ebenfalls keine überstehenden Dichtränder.

25 Die erfindungsgemäße Abdichtung der Membran-Elektrodeneinheit ist generell für alle Reaktionsgase anwendbar. Mit besonderem Vorteil kann sie jedoch an der Wasserstoff-Seite einer Brennstoffzelle eingesetzt werden, da Wasserstoff zum einen sehr gut diffundiert und daher die  
30 größten Probleme bei der Abdichtung bereitet, und zum anderen sehr reaktiv ist und im Falle eines Lecks erhebliche Schwierigkeiten auftreten.

Die Ausbildung eines Dichtrandes durch Einbringen eines Dichtmittels in die Elektrodenrandbereiche sowie die Abdichtung von Durchführungen durch Einbringen eines Dichtmittels in die die Durchführungen umgebenden Elektrodenbereiche ist grundsätzlich bei jeder Membran-Elektrodeneinheit mit porösen Elektroden möglich, unabhängig davon, ob ein bündiger Stirnseitenabschluß vorliegt. Insbesondere ist auch die erfindungsgemäße Abdichtung von Durchführungen möglich, unabhängig davon, welche Art von Dichtung für den äußeren Umfang der Membran-Elektrodeneinheit gewählt wird.

10

Besonders vorteilhafte Ausführungsformen der Erfindung werden anhand der nachstehenden Figuren erläutert.

In den Zeichnungen zeigen:

15

Fig. 1 einen Querschnitt durch eine erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit, noch ohne Dichtrand,

20

Fig. 2 eine Aufsicht auf eine erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit,

Fig. 3 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß dem Stand der Technik,

25

Fig. 4 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichtrand und Durchführung gemäß einer Ausführungsform der Erfindung,

30

Fig. 5 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichtrand, Durchführung und bipolarer Platte gemäß einer Ausführungsform der Erfindung,

Fig. 6 einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichtrand gemäß einer anderen Ausführungsform der Er-

findung, in Kombination mit beidseitig angebrachten bipolaren Platten,

- 5      Fig. 7    einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit mit  
Dichtrand gemäß einer weiteren Ausführungsform der Er-  
findung in Kombination mit einseitig angebrachter bipolarer  
Platte,
- 10      Fig. 8    einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß  
der Erfindung mit überstehenden, mit bipolaren Platten ver-  
bundenen Dichträndern,
- 15      Fig. 9    einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß  
der Erfindung mit bündigen, mit bipolaren Platten verbundenen  
Dichträndern,
- 20      Fig. 10   einen Querschnitt durch eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß  
der Erfindung mit Durchführungen im Dichtrand,
- 25      Fig. 11   eine Draufsicht auf eine Membran-Elektrodeneinheit gemäß der  
Erfindung mit Durchführungen im Dichtrand
- 30      Fig. 12   einen Querschnitt durch eine in einen Brennstoffzellenstapel  
eingebaute Brennstoffzelle mit erfindungsgemäßer Membran-  
Elektrodeneinheit.

Membran-Elektrodeneinheiten 1 bestehen aus einer Membran 2, einer an  
einer Oberfläche der Membran angebrachten Anode 3 und einer an der  
anderen Oberfläche der Membran angebrachten Kathode 4. Die der  
Membran zugewandten Seite der Elektroden enthält jeweils Katalysator.  
Bei konventionellen Membran-Elektrodeneinheiten, wie sie in Fig. 3  
gezeigt sind, besitzen Anode 3 und Kathode 4 gleiche Abmessungen,  
während die Membran 2 deutlich größer ist, so daß beim Laminieren  
Membran-Randbereiche 25 entstehen, die nicht von porösem Elektroden-



material bedeckt sind und an denen Dichtungen angebracht werden können. Allerdings schließt ein derartiger Aufbau einfache und schnelle Herstellungsverfahren aus.

5 Erfindungsgemäß können Membran-Elektrodeneinheiten einfach und schnell hergestellt werden, indem man großflächige Stücke oder Bahnen aus Membran-Elektrodeneinheitmaterial herstellt und dieses dann in einzelne Membran-Elektrodeneinheiten der gewünschten Größe aufteilt. Die so erhaltene einzelne Membran-Elektrodeneinheit weist allerdings, wie aus Fig. 1 ersichtlich ist, außer der Stirnfläche keine Membranfläche auf, die nicht von Elektrodenmaterial bedeckt ist. Konventionelle Dichtungen können daher aufgrund der Porosität der Elektroden nicht angebracht werden.

15 Erfindungsgemäß wird die Membran-Elektrodeneinheit 1 mit an den Stirnflächen bündigem Abschluß von Membran 2, Anode 3 und Kathode 4 dadurch abgedichtet, daß man ein Dichtmittel, beispielsweise einen Kunststoff, in einen Randbereich 6' der Anode 3 und einen Randbereich 7' der Kathode 4 eindringen läßt. Die Randbereiche 6' und 7' definieren lediglich die Bereiche, in die das Dichtmittel eindringen soll. Das Dichtmittel füllt die Poren der porösen Elektroden und vermittelt eine gasdichte Haftung an der Membran. Ein Austritt von Reaktionsgasen in molekularer Form in "radialer" Richtung aus den Elektroden heraus oder ein Austritt entlang den Grenzflächen zwischen Elektroden und Membran wird damit verhindert.

Der Dichtrand 5 der erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit kann hinsichtlich Form und Abmessungen unterschiedlich ausgebildet sein. Fig. 4 zeigt eine Membran-Elektrodeneinheit, bei der der anodenseitige Teil 6 des Dichtrands 5, d.h. der in den Randbereich 6' der Anode eindringende Bereich des Dichtrands 5, bündig mit der membranabgewandten Oberfläche der Anode 3 abschließt, während der kathodenseitige Teil 7 des Dichtrands 5, d.h. der in den Randbereich 7' der Kathode eindringende Bereich des Dichtrands 5, einen Bereich 9 enthält.

der über die membranabgewandte Oberfläche der Kathode 4 übersteht. Die Membran-Elektrodeneinheit enthält außerdem eine Durchführung 28 mit einem Dichtrand 5', d.h. anodenseitigem Dichtrand 26 und kathodenseitigem Dichtrand 27. Der kathodenseitige Teil 27 des  
5 Dichtrands 5' steht über die membranabgewandte Oberfläche der Kathode über. Bei der in Fig. 4 gezeigten Ausführungsform gehen sowohl Durchführung 28 als auch Dichtrand 5' durch die gesamte Membran-Elektrodeneinheit 1 hindurch. Auch in die Membran 2 ist Dichtmittel eindiffundiert. Durchführung und/oder Dichtrand können jedoch  
10 auch in einer Elektrode enden. Beispielsweise kann durch eine in der Anode teilweise dichtrandfreie Durchführung Wasserstoff zur Anode gebracht werden und in sie hineindiffundieren. Alternativ kann die Durchführung auch im Dichtrand integriert sein, wie nachfolgend noch näher ausgeführt werden wird.

15 Fig. 2 zeigt eine Aufsicht auf die Ausführungsform gemäß Fig. 4 von der Kathodenseite her. Die hier dargestellte Membran-Elektrodeneinheit ist quadratisch. Sie kann jedoch auch jede beliebige andere Form haben. Wie aus Fig. 2 ersichtlich wird, ist die Kathode an ihrem gesamten  
20 Umfang und an der Durchführung 28 abgedichtet und enthält innerhalb des überstehenden Bereichs 9 des Dichtrands einen freien Kathodenbereich 13. Ein derartiger freier Bereich erlaubt es, an der entsprechenden Elektrode Gasführungsstrukturen anzubringen, wie sie bei der Verwendung von Reaktionsgasen mit mässigen Diffusionseigenschaften oder  
25 starker Verdünnung durch Inertgase in der Regel erforderlich sind. Bei der Verwendung von Wasserstoff, der über ausgezeichnete Diffusionseigenschaften verfügt, kann häufig auf eine Gasführungsstruktur verzichtet werden. An der Anodenseite ist es daher bei der Verwendung von  $H_2$  als Brenngas möglich, die die Brennstoffzelle abschließende  
30 bipolare Platte ohne Zwischenschaltung einer Gasführungsstruktur direkt auf die Anode 3 aufzusetzen, so daß der anodenseitige Teil 6 des Dichtrands 5 hier bündig mit der Anodenoberfläche abschliessen kann, wie in Fig. 4 gezeigt.

Fig. 5 zeigt eine erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit 1, die anodenseitig eine bipolare Platte 14 aufweist. Die bipolare Platte 14 ist gasdicht mit den überstehenden Bereichen 8 des Dichtrands verbunden, z.B. verklebt, so daß zwischen Membran 2, anodenseitigem Dichtrand 6 und bipolarer Platte 14 ein gasdichter Raum gebildet wird. Die Verklebung erfolgt dabei bevorzugt durch das Dichtmittel selbst. Membran-Elektrodeneinheit und bipolare Platte 14 enthalten eine Durchführung 28 bzw. 24 für Brenngas zur Zuleitung bzw. Abführung von Brenngas. Zwischen bipolarer Platte 14, Anode 3 und den überstehenden Bereichen 8 des Dichtrands ist Raum für eine Gasführungsstruktur 18, beispielsweise ein Gitternetz. Bei der in Fig. 5 gezeigten Ausführungsform ist um die Durchführung 28 ein Dichtrand 5' ausgebildet, der über die membranabgewandte Oberfläche der Anode ebenso weit übersteht wie der am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit ausgebildete Dichtrand 5. Die bipolare Platte 14 wird so durch den Dichtrand 5' zusätzlich abgestützt. Der durch die Durchführung 28 strömende Wasserstoff tritt zum Teil durch eine Öffnung 23 im Dichtrand 5' in die Gasführungsstruktur 18 der Brennstoffzelle ein, zum Teil wird er durch die Durchführung 24 in der bipolaren Platte 14 zur Nachbarzelle weitergeleitet. Eine derartige Einleitung von Wasserstoff (oder anderen Gasen) ist auch möglich, wenn die Durchführung in den Dichtrand 5 am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit integriert ist.

Dasselbe ist für die Oxidationsmittelzufuhr an der Kathode möglich.

Zur Ausbildung des Dichtrandes 5 kann ein beliebiges Dichtmittel verwendet werden, das in der Lage ist, in die Poren der Elektrodenrandbereiche einzudringen, unter den Betriebsbedingungen einer Brennstoffzelle im wesentlichen unverändert dort zu verbleiben und eine Barriere gegen den Austritt von Reaktionsgasen zu bilden. Geeignet sind insbesondere aushärtbare Kunststoffe und Kunststoffe, die unter Anwendung von erhöhter Temperatur und/oder Druck gegebenenfalls nach vorherigem Evakuieren in definierten Bereichen in die Poren der Elektroden eindringen können.

Zur Ausbildung des Dichtrands wird beispielsweise ein in der passenden Größe zugeschnittenes oder ausgestanztes Stück eines Membran-Elektrodenmaterials in eine Vergußform eingelegt, wobei die Bereiche der Elektroden, an denen kein Dichtrand ausgebildet werden soll sowie ggf. die Bereiche, in denen Durchführungen vorgesehen sind, von der Vergußform abgegrenzt werden. Dann kann Kunststoff in flüssiger Form, z.B. ein durch Wärme verflüssigter Thermoplast, eingefüllt und durch Anwendung von Druck, bevorzugt bis ca. 200 bar, an den nicht abgegrenzten Bereichen der Elektroden in die Poren der Elektroden gepreßt werden. Je nach dem, ob es gewünscht ist, Dichtränder mit bündigem Abschluß mit den Elektrodenoberflächen oder Dichtränder, die über die Elektrodenoberflächen überstehen, zu erhalten, muß die Ausbildung des Formwerkzeugs entsprechend gewählt werden.

Bei Membran-Elektrodeneinheiten gängiger Abmessungen (ca. 3 cm<sup>2</sup> bis 1.600 cm<sup>2</sup>) ist es günstig, Dichtränder mit einer Breite von näherungsweise 0,3 cm bis 1 cm, typischerweise 0,5 cm, vorzusehen. Die Höhe der gegebenenfalls überstehenden Bereiche des Dichtrands richtet sich nach der Dicke der Gasführungsstruktur, die an der Elektrode angebracht werden soll.

Alternativ zum Einbringen bzw. Einpressen eines durch erhöhte Temperatur verflüssigten Kunststoffs unter Druck in die Poren der Elektroden kann auch ein aushärtbarer flüssiger Kunststoff von niedriger Viskosität verwendet werden, der auf Grund der Kapillarwirkung in die Poren in den Randbereichen der Elektroden eindringt und anschließend ausgehärtet wird.

Geeignete aushärtbare Kunststoffe sind insbesondere Epoxidharze, Silicone und Polyesterharze, geeignete Thermoplaste sind insbesondere Polyethylene, Polypropylene und Polyamide.

Im folgenden wird ein Beispiel zur Herstellung einer erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit 1 beschrieben.

Ein Membran-Elektrodenmaterial, das besteht aus einer Membran Gore Select der Firma Gore & Associates, Inc., einer Kathode nach der Patentanmeldung P 19 544 323.3 der Firma Magnet Motor GmbH und einer konventionellen Anode, wird auf eine Größe von etwa 90 x 50 mm zugeschnitten. Bei der Kathode nach der genannten Patentanmeldung handelt es sich um eine Gasdiffusionselektrode aus einem Kohlefaservlies, das mit Ruß und Polytetrafluorethylen (Massenverhältnis hier 5:1) im wesentlichen homogen imprägniert ist, und einer katalytisch aktiven Schicht. Der hier verwendete Katalysator ist Platin auf Kohlenstoff. Die Membran ist vollständig von den Elektroden bedeckt. Die zugeschnittene Membran-Elektrodeneinheit wird in eine Vergußform eingelegt, deren Grundfläche an ihrem Umfang auf einer Breite von etwa 5 mm um etwa 0,3 mm abgesenkt ist. Die Membran-Elektrodeneinheit liegt also an ihrem Randbereich nicht direkt auf der Grundfläche der Vergußform auf. Auf die Membran-Elektrodeneinheit wird eine Platte aus Edelstahl aufgelegt, die eine der Grundplatte entsprechende, hinsichtlich der Anordnung zur Membran-Elektrodeneinheit jedoch spiegelbildliche Form aufweist. Die Membran-Elektrodeneinheit ist also auch an ihrer anderen Oberfläche in einem etwa 5 mm breiten Randbereich nicht in direktem Kontakt mit der Vergußform. Anstelle der Grund- und Abdeckplatte können bipolare Platten verwendet werden, so daß die Membran-Elektrodeneinheit bei der Ausbildung des Dichtrandes gleichzeitig mit den bipolaren Platten verklebt wird. In der Form sind Bohrungen zum Einbringen von Kunststoff vorgesehen, durch die die freien Volumina der Vergußform mit dem Epoxidharz Körapox 439 der Firma Kömmerling (Deutschland) oder dem Zweikomponentenlack CFM 340 auf DD-Basis der Firma Dr. Wiedeking gefüllt werden. Sehr gut geeignet ist auch die Epoxidharzvergußmasse 5100/5620 GA der Firma Rhenatech GmbH. Diese Kunststoffe saugen sich aufgrund der Kapillarwirkung in die Poren der Elektroden, vorwiegend an den nicht abgedeckten Bereichen der

Elektroden. Daher ist ein mehrmaliges Nachfüllen während der Topfzeit notwendig. Anschließend werden die Kunststoffe bei etwa 60°C ausgehärtet und die fertige Membran-Elektrodeneinheit entformt. Auf diese Weise wird eine Membran-Elektrodeneinheit mit Dichträndern 6  
5 im Anodenbereich und 7 im Kathodenbereich erzeugt, die eine Breite von ca. 5 mm aufweisen und etwa 0,3 mm über die Oberflächen der Elektroden überstehen.

Abhängig vom Material der Membran 2, dem verwendeten Dichtmittel  
10 und den Bedingungen, unter denen der Dichtrand hergestellt wird (Druck, Temperatur), kann das Dichtmittel unter Umständen auch in die Membran eindringen, wodurch mit Dichtmittel gefüllte Bereiche 10 der Membran entstehen, wie in Fig. 6 gezeigt. Je nach gewünschter  
15 Dichtrandvariante sind die im Einzelfall jeweils erforderlichen Reaktionsbedingungen vom Fachmann in Abhängigkeit von den gewählten Materialien durch orientierende Vorversuche leicht zu ermitteln. Membran-Elektrodeneinheiten 1 mit die Membran 2 teilweise durchdringendem Dichtrand 5 besitzen eine extrem hohe Dichtheit gegen  
20 den Austritt oder Übertritt von Reaktionsgasen. Die in Fig. 6 gezeigte Ausführungsform der erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit 1 ist mit anodenseitiger Bipolarplatte 14 und kathodenseitiger Bipolarplatte 15 zu einer Brennstoffzelle montiert, wobei zwischen Membran 2, anodenseitigem Dichtrand 6 und Bipolarplatte 14 bzw. zwischen  
25 Membran 2, kathodenseitigem Dichtrand 7 und Bipolarplatte 15 jeweils gasdichte Räume ausgebildet sind. Zwischen den überstehenden Bereichen 8 bzw. 9 der Dichtränder sind Hohlräume zur Aufnahme von Gasführungsstrukturen 18 bzw. 19 vorgesehen.

Eine alternative Ausführungsform des Dichtrandes 5 einer erfindungsgemäßen Membran-Elektrodeneinheit 1 ist in Fig. 7 dargestellt. Der  
30 Dichtrand 5 dringt hier nicht oder nur teilweise in Poren des Elektrodenmaterials ein, sondern haftet an der Stirnfläche der Membran, der Membran und einer Elektrode oder eines Teils einer Elektrode, oder, wie in Fig. 7 gezeigt, am Umfang der gesamten Membran-

Elektrodeneinheit. Dabei muß gewährleistet sein, daß die Haftung zwischen Dichtmaterial und der Membran bzw. den Materialien der Elektroden fest und dicht genug ist, um einen Austritt von Reaktionsgasen zu verhindern. Als Materialien zur Ausbildung des Dichtrandes 5 kommen Kunststoffe in Frage, und zwar in erster Linie solche, wie sie auch für die erste Ausführungsform des Dichtrands geeignet sind. Um die Haftung an der Stirnseite der sehr dünnen Membran 2' in jedem Fall zu gewährleisten, kann vor dem Anbringen des Dichtrands 5 ein Haftvermittler, z.B. ein  $\text{SiO}_2$  ausscheidender Haftvermittler, 11 aufgebracht werden oder die Stirnseite der Membran kann angeätzt werden. Diese Ausführungsform eignet sich insbesondere für etwas dickere Membranen (ab ca. 100  $\mu\text{m}$ ), während die durch Eindringen von Dichtmittel in die Poren der Elektrodenrandbereiche ausgebildeten Dichtränder bei beliebig dünnen Membranen (z.B. 5  $\mu\text{m}$ ) bevorzugt anwendbar sind.

Die Anbringung des Dichtrandes an der Stirnseite erfolgt ähnlich wie die Ausbildung des Dichtrandes in Randbereichen der Elektroden, nämlich durch Einlegen eines Stücks eines Membran-Elektrodenmaterials geeigneter Größe in eine Vergußform, die in den Bereichen, an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll, Raum für die Einbringung des Dichtmittels läßt, Einbringen und anschließendes Verfestigen bzw. Aushärten des Dichtmittels. Sollen im Dichtrand Durchführungen vorgesehen werden, muß die Vergußform so ausgebildet sein, daß in die Durchführungsbereiche kein oder wenig Dichtmittel eindringen kan. Dies ist beispielsweise durch Einsetzen von Stiften möglich, an denen das Dichtmittel schlecht haftet, und die daher leicht wieder entfernt werden können. Die Breite stirnseitig angebrachter Dichtränder liegt bei Membran-Elektrodeneinheiten üblicher Größe bei etwa 0,2 cm bis 1 cm, bevorzugt bei ca. 0,5 cm oder weniger.

Beim Ausbilden den Dichtrands an den Stirnseiten von Membran 2 und Elektroden 3, 4 kann bei geeigneten Reaktionsbedingungen auch Dichtmittel in die Randbereiche der Elektroden eintreten, so daß eine Kombination aus stirnseitigem Dichtrand und Dichtrand in den

Elektrodenrandbereichen 6', 7' erhalten wird, wie es in Fig. 7 durch die gestrichelten Linien angedeutet ist.

Die Fig. 8 und 9 zeigen alternative Möglichkeiten zur Ausbildung eines Hohlraums zur Aufnahme einer Gasführungsstruktur, wobei Fig. 8 die vorstehend erläuterte Möglichkeit der Ausbildung überstehender Dicht-  
ränder zeigt. In der in Fig. 9 gezeigten Ausführungsform schließen die Dichtränder 6 und 7 an Anode bzw. Kathode bündig mit der Oberfläche von Anode bzw. Kathode ab. Dafür hat die bipolare Platte 14 bzw. 15 einen dünnen Mittelbereich sowie einen dicken Randbereich 16 bzw. 17, wobei die Differenz aus der Dicke des Randbereichs und der Dicke des Mittelbereichs die Höhe des zur Aufnahme einer Gasführungsstruktur zur Verfügung stehenden Hohlraums definiert. Die Breite der Randbereiche 16 und 17 wird bevorzugt entsprechend der Breite des Dichtrands 5 gewählt.

Zur Erzielung einer besonders festen Haftung zwischen Dichtrand 5 und bipolarer Platte 14, 15 können in den überstehenden Bereichen 8, 9 des Dichtrandes Aussparungen 29 zur Aufnahme eines zusätzlichen Klebstoffs, z.B. Silicon, vorgesehen werden.

Zur Zuleitung von Reaktionsgasen, Kühlmittel oder zur Anbringung von Befestigungsvorrichtungen ist es oft erforderlich, eine oder mehrere Öffnungen oder Durchführungen in den Membran-Elektrodeneinheiten vorzusehen, die gegen ein Austreten oder Übertreten von Gasen abgedichtet werden müssen. Diese Durchführungen können jede für sich separat abgedichtet werden, wie es in den Figuren 4 und 5 gezeigt ist, bei denen jeweils nur eine Durchführung vorhanden ist, die durch mit Dichtmittel gefüllte Bereiche 5' abgedichtet wird. Wenn mehrere Durchführungen benötigt werden, können diese auch zu einer oder mehreren Gruppen nahe beieinanderliegender Durchführungen zusammengefaßt werden, die gemeinsam abgedichtet werden, d. h., die Durchführungen einer Gruppe werden voneinander und vom aktiven



Bereich der Membran-Elektrodeneinheit durch mit Dichtmittel gefüllte Bereiche 5' getrennt.

Bei diesen Ausführungsformen muß allerdings für die Durchführungen und ihre Abdichtungen ein Teilbereich der Membran-Elektrodeneinheit verwendet werden, der ansonsten als aktiver Bereich zur Verfügung stünde. Dieser Verlust an aktivem Bereich kann vermieden werden, wenn man die Durchführungen in den Dichtrand am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit integriert, wie es beispielhaft in den Figuren 10 und 11 dargestellt ist.

Fig. 10 zeigt eine Membran-Elektrodeneinheit mit Membran 2, Anode 3, Kathode 4 und Dichtrand 5 am Außenumfang der Membran-Elektrodeneinheit, wobei auch Dichtmittel in die Randbereiche von Anode 3 und Kathode 4 eingedrungen ist unter Ausbildung des Dichtbereichs 6 bzw. 7. Der Dichtrand 5 steht über die Anodenoberfläche sowie über die Kathodenoberfläche über. In dem nur aus Dichtmittel bestehenden Bereich des Dichtrands ist eine zur Ebene der Membran-Elektrodeneinheit im wesentlichen senkrecht verlaufende Durchführung 30 vorgesehen. In Höhe des über die Anodenoberfläche überstehenden Bereichs des Dichtrands 5 zweigen davon waagrechte, d. h. parallel zur Membran-Elektrodeneinheit verlaufende Verteilerdurchführungen ab, wie aus Fig. 11 ersichtlich ist. Fig. 11 zeigt eine Aufsicht auf die Membran-Elektrodeneinheit gemäß Fig. 10 von der Anodenseite her (ohne bipolare Platte 14). Diese Verteilerdurchführungen haben, vorwiegend aus Gründen der einfachen Herstellbarkeit, die Form von Rillen 31 in der anodenseitigen Oberfläche des Dichtrands 5 und münden in den eine Gasführungsstruktur 18 enthaltenden Raum zwischen Anodenoberfläche und bipolarer Platte 14. Die Rillen 31 können bei der Herstellung des Dichtrands durch Verwendung einer passend ausgebildeten Vergußform in die Oberfläche des Dichtrands 5 eingeformt oder nachträglich in den Dichtrand eingeformt, z. B. eingefräst, werden. Die bipolare Platte 14 besitzt an der über der Durchführung 30 gelegenen Stelle eine Durchführung 24

und schließt ansonsten die Rillen 31 und den Raum für die Gasführungsstruktur 18 über der Anode gasdicht ab. Auf diese Weise kann Wasserstoff, der durch die Durchführung 30 strömt, einerseits durch die Rillen 31 der Anode 3 zugeführt werden und andererseits durch die Durchführung 24 in der bipolaren Platte 14 in die Nachbarzelle weitergeleitet werden. Zur Erzielung einer besonders festen Haftung zwischen Dichtrand und bipolarer Platte ist in dem Dichtrand eine Aussparung 29 vorgesehen, in die zusätzlicher Klebstoff eingebracht wird.

Die erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheit mit Durchführungen im Dichtrand kann hergestellt werden, wie es vorstehend für Dichtränder ohne Durchführung beschrieben wurde, wobei die Bereiche der späteren Durchführungen und Rillen von der Form abgegrenzt werden müssen, so daß kein Dichtmittel eindringen kann. Alternativ kann auch zuerst ein Dichtrand ohne Durchführung und/oder Rillen hergestellt werden und diese dann am fertigen Dichtrand angebracht werden, etwa durch Bohren, Stanzen oder Fräsen.

Fig. 12 zeigt einen Ausschnitt aus einem Brennstoffzellen-Stapel mit Brennstoffzellen, die erfindungsgemäße Membran-Elektrodeneinheiten 1 aufweisen. Bei dem gezeigten Brennstoffzellenstapel wird Sauerstoff nicht in abgeschlossene und abgedichtete Oxidationsmittelgas-Räume eingeführt, sondern mittels eines Ventilators zwischen der den Abschluß einer Zelle bildenden bipolaren Platte und der Kathodenoberfläche der Nachbarzelle hindurchgeblasen, wobei ein Gitternetz zwischen bipolarer Platte und Kathode die Einhaltung des erforderlichen Abstands garantiert. Die in Fig. 12 gezeigte Einheit aus Membran 2, Anode 3, Kathode 4 und bipolarer Platte 14 (mit Gasdurchlässen 20 für Wasserstoff) kann, sollte sich im Laufe der Betriebsdauer des Brennstoffzellenstapels irgendwo ein Wasserstoff-Leck gebildet haben, problemlos einzeln aus dem Stapel entfernt werden, so daß der Anodenraum jeder einzelnen Zelle separat auf Dichtheit überprüft werden kann.

Die vorliegende Erfindung ermöglicht es somit, auf einfache und preiswerte Art Membran-Elektrodeneinheiten herzustellen, die in Kombination mit einer bipolaren Platte die Ausbildung gasdichter Elektrodenräume ermöglichen. In jeder Brennstoffzelle können die gasdichten Elektrodenräume separat auf Dichtheit überprüft werden.

5

K 46 995/8

BEZUGSZEICHENLISTE

- |    |    |  |
|----|----|--|
| 5  | 1  | Membran-Elektrodeneinheit  |
|    | 2  | Polymerelektrolytmembran   |
|    | 3  | Anode  |
|    | 4  | Kathode  |
|    | 5  | Dichtrand am Umfang der Membran-Elektrodeneinheit                              |
| 10 | 5' | Dichtrand um Durchführung 28   |
|    | 6' | Randbereich am Umfang der Anode, in den das Dichtmittel ein-<br>dringen soll   |
|    | 6  | anodenseitiger Bereich des Dichtrands 5  |
|    | 7' | Randbereich am Umfang der Kathode, in den das Dichtmittel ein-<br>dringen soll |
| 15 | 7  | kathodenseitiger Bereich des Dichtrands 5                                      |
|    | 8  | über die Anodenoberfläche überstehender Bereich des Dichtrands 5               |
|    | 9  | über die Kathodenoberfläche überstehender Bereich des Dichtrands<br>5          |
| 20 | 10 | mit Dichtmittel gefüllter Membranrandbereich                                   |
|    | 11 | Haftvermittler   |
|    | 13 | dichtrandfreier Kathodenbereich  |
|    | 14 | anodenseitige bipolare Platte  |
|    | 15 | kathodenseitige bipolare Platte  |
| 25 | 16 | verdickter Randbereich der anodenseitigen bipolaren Platte                     |
|    | 17 | verdickter Randbereich der kathodenseitigen bipolaren Platte                   |
|    | 18 | anodenseitige Gasführungsstruktur  |
|    | 19 | kathodenseitige Gasführungsstruktur  |
|    | 20 | Gasdurchlaß für Wasserstoff in bipolarer Platte 14                             |
| 30 | 21 | Zuleitung für Wasserstoff  |
|    | 22 | Ableitung für Wasserstoff  |
|    | 23 | Öffnung im Dichtrand 5'  |
|    | 24 | Durchführung in bipolarer Platte 14  |
|    | 25 | Membranrandbereiche, nicht von Elektrodenmaterial bedeckt                      |

- 23 -

- 26' anodenseitiger Randbereich um Durchführung 28
- 26 anodenseitiger Bereich des Dichtrands 5'
- 27' kathodenseitiger Randbereich um Durchführung 28
- 27 kathodenseitiger Bereich des Dichtrands 5'
- 5 28 Durchführung durch Membran-Elektrodeneinheit
- 29 Aussparung im Dichtrand zur Aufnahme von Klebstoff zur  
Verklebung mit Bipolarplatte
- 30 Durchführung durch Dichtrand 5
- 31 Rillen im Dichtrand 5
- 10

## ANSPRÜCHE

5

1. Membran-Elektrodeneinheit (1) mit integriertem Dichtrand (5) für eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit einer Polymerelektrolytmembran (2), einer an einer Oberfläche der Membran angeordneten Anode (3) und einer an der anderen Oberfläche der Membran angeordneten Kathode (4), **dadurch gekennzeichnet**, daß die Membran (2) an beiden Oberflächen im wesentlichen vollständig von den Elektroden (3, 4) bedeckt ist und um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit (1) ein Dichtrand (5) vorgesehen ist, der einen Randbereich (6', 7') mindestens einer der Elektroden (3,4) durchdringt und an dem mit dem Randbereich (6', 7') in Berührung stehenden Bereich der Membran (2) haftet und/oder der an den Stirnflächen mindestens der Membran (2) haftet.
2. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß sie mindestens eine Durchführung (28) aufweist, an der mindestens in einen Teilbereich ein Dichtrand (5') vorgesehen ist, der einen die Durchführung umgebenden Randbereich (26', 27') mindestens einer der Elektroden (3, 4) durchdringt und an dem mit dem Randbereich in Berührung stehenden Bereich der Membran (2) haftet und/oder der an den Stirnflächen mindestens der Membran (2) haftet.
3. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß sie mindestens eine Durchführung (30) in dem Dichtrand (5) um den Umfang der Membran-Elektrodeneinheit aufweist.

4. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 3,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß im Dichtrand (5) mindestens eine mit der Durchführung (30) in  
Verbindung stehende Einrichtung (31) zur Zuführung eines  
Reaktionsgases zu mindestens einer Elektrode oder einem  
Elektrodenraum ausgebildet ist.
5. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 4,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß die mindestens eine Einrichtung (31) in einer Oberfläche des  
Dichtrands (5) vorgesehene Rillen sind.
6. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 5,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß der Dichtrand (5) einen Randbereich (6') der Anode (3) durch-  
dringt und an dem mit dem Randbereich (6') in Berührung  
stehenden Bereich der Membran (2) haftet.
7. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 6,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß der Dichtrand (5) an den Stirnflächen mindestens der Anode (3)  
und den Stirnflächen der Membran (2) haftet.
8. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß der Dichtrand (5, 5') bündig mit der membranabgewandten  
Oberfläche der mindestens einen Elektrode (3, 4) abschließt.
9. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß der Dichtrand (5, 5') übersteht über die membranabgewandte  
Oberfläche der mindestens einen Elektrode (3, 4).
10. Membran-Elektrodeneinheit nach Anspruch 9,

dadurch gekennzeichnet,

daß in dem überstehenden Bereich des Dichtrandes (5) eine Aussparung (29) zur Aufnahme eines Klebstoffs vorgesehen ist.

- 5            11. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 10,  
              **dadurch gekennzeichnet,**  
              daß der Dichtrand (5, 5') aus Kunststoff besteht oder Kunststoff  
              enthält.
- 10           12. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 11,  
              **dadurch gekennzeichnet,**  
              daß der Kunststoff ein Thermoplast oder ein aushärtbarer Kunststoff  
              ist, der in geschmolzenem Zustand bzw. vor dem Aushärten aus-  
15            reichend flüssig und niederviskos ist, um durch Kapillarwirkung in  
              die Poren mindestens einer der Elektroden (3, 4) eindringen zu  
              können.
13. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach Anspruch 11,  
              **dadurch gekennzeichnet,**  
20            daß der Kunststoff bei Raumtemperatur oder erhöhter Temperatur  
              ausreichend flüssig und niederviskos ist, um unter Druck in die  
              Poren mindestens einer der Elektroden (3, 4) eindringen zu können.
14. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 11 bis  
25            13,  
              **dadurch gekennzeichnet,**  
              daß der Kunststoff ein Polyethylen, ein Polypropylen oder ein  
              Polyamid ist.
- 30           15. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 11 bis  
              13,  
              **dadurch gekennzeichnet,**  
              daß der Kunststoff ein Epoxidharz, ein Silicon oder ein Polyester-  
              harz ist.



16. Membran-Elektrodeneinheit (1) nach einem der Ansprüche 1 bis 15,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß der Dichtrand (5) mindestens der Anode (3) mit einer Bipolar-  
platte (14, 15) wasserstoffdicht verklebt ist.
17. Verfahren zur Herstellung einer Membran-Elektrodeneinheit (1) mit  
integriertem Dichtrand (5) für eine Polymerelektrolytmembran-  
Brennstoffzelle, folgende Schritte aufweisend:
- Bereitstellen eines Membran-Elektroden-Schichtmaterials aus  
Anodenmaterial (3), Kathodenmaterial (4) und dazwischen  
angeordnetem Polymerelektrolytmembran-Material (2),
  - Abtrennen eines Teilstücks des Schichtmaterials in der zur  
Herstellung der gewünschten Membran-Elektrodeneinheit (1)  
geeigneten Größe, wobei in dem abgetrennten Teilstück die  
Membran (2) an beiden Oberflächen im wesentlichen voll-  
ständig von den Elektroden (3, 4) bedeckt ist,
  - Ausbilden eines Dichtrandes (5) um den Umfang des Teilstücks  
dergestalt, daß der Dichtrand (5) einen Randbereich (6', 7')  
mindestens einer der Elektroden (3, 4) durchdringt und an dem  
mit dem Randbereich (6', 7') in Berührung stehenden Bereich  
der Membran (2) haftet und/oder der Dichtrand an den Stirn-  
flächen mindestens der Membran (2) haftet.
18. Verfahren nach Anspruch 17, außerdem folgende Schritte auf-  
weisend:
- Ausbilden einer Durchführung (28) und
  - Ausbilden eines Dichtrands (5') mindestens an einem Teilbe-  
reich eines die Durchführung umgebenden Randbereichs (26',  
27') mindestens einer der Elektroden (3, 4) dergestalt, daß der  
Dichtrand den Randbereich durchdringt und an dem mit dem  
Randbereich in Berührung stehenden Bereich der Membran (2)

haftet, und/oder der Dichtrand an den Stirnflächen mindestens der Membran (2) haftet.

- 5           19. Verfahren nach Anspruch 17 oder 18,  
            **dadurch gekennzeichnet,**  
            daß in dem Dichtrand (5) um den Umfang der Membran-  
            Elektrodeneinheit (1) mindestens eine Durchführung (30) ausgebildet  
            wird.
- 10           20. Verfahren nach Anspruch 19,  
            **dadurch gekennzeichnet,**  
            daß in dem Dichtrand (5) mindestens eine mit der Durchführung (3)  
            in Verbindung stehende Einrichtung (31) zur Zuführung eines  
            Reaktionsgases zu mindestens einer Elektrode oder einem  
15           Elektrodenraum ausgebildet wird.
21. Verfahren nach Anspruch 20,  
            **dadurch gekennzeichnet,**  
            daß die mindestens eine Einrichtung (31) in Form von Rillen in  
20           einer Oberfläche des Dichtrands (5) vorgesehen wird.
22. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 21,  
            **dadurch gekennzeichnet,**  
            daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Eindringenlassen  
25           eines Dichtmittels in den Randbereich (6'; 7'; 26'; 27') mindestens  
            einer der Elektroden (3, 4), wobei die Poren der mindestens einen  
            Elektrode (3, 4) im wesentlichen vollständig gefüllt werden.
- 30           23. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 22,  
            **dadurch gekennzeichnet,**  
            daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Anbringen eines  
            Dichtmittels an den Stirnflächen mindestens einer der Elektroden (3,  
            4) und den Stirnflächen der Membran (2).

24. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 23,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß der Dichtrand (5, 5') unter Verwendung von thermoplastischem  
oder aushärtbarem Kunststoff ausgebildet wird.
- 5
25. Verfahren nach Anspruch 24,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß als Kunststoff Polyethylen, Polypropylen oder ein Polyamid  
verwendet wird.
- 10
26. Verfahren nach Anspruch 24,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß als Kunststoff ein Epoxidharz, ein Silicon oder ein Polyester-  
harz verwendet wird.
- 15
27. Verfahren nach einem der Ansprüche 24 bis 26,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Inkontaktbringen  
von Kunststoff in flüssiger Form mit einem Randbereich (6'; 7';  
20 26'; 27') mindestens einer der Elektroden (3, 4) und Verfestigen  
bzw. Aushärten.
28. Verfahren nach einem der Ansprüche 24 bis 27,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
25 daß der Dichtrand (5) ausgebildet wird durch Inkontaktbringen von  
Kunststoff in flüssiger Form mit den Stirnflächen mindestens der  
Membran (2) und Verfestigen bzw. Aushärten.
29. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 28,  
**dadurch gekennzeichnet,**  
30 daß der Dichtrand (5, 5') unter Anwendung von Druck und/oder er-  
höhter Temperatur ausgebildet wird.
30. Verfahren nach Anspruch 29,

dadurch gekennzeichnet,  
daß vor der Anwendung von Druck evakuiert wird.

- 5           31. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 30,  
          **dadurch gekennzeichnet,**  
          daß der Dichtrand (5, 5') ausgebildet wird durch Eindringenlassen  
          des Dichtmittels aufgrund von Kapillarwirkung in den Randbereich  
          (6', 7') mindestens einer der Elektroden (3, 4).
- 10          32. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 31,  
          **dadurch gekennzeichnet,**  
          daß der Dichtrand (5, 5') dergestalt ausgebildet wird, daß er bündig  
          mit der membranabgewandten Oberfläche mindestens einer der  
          Elektroden (3, 4) abschließt.
- 15          33. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 31,  
          **dadurch gekennzeichnet,**  
          daß der Dichtrand (5, 5') dergestalt ausgebildet wird, daß er über  
          die membranabgewandte Oberfläche mindestens einer der  
20          Elektroden (3, 4) übersteht.
34. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 33,  
          **dadurch gekennzeichnet,**  
          daß die Bereiche der Elektroden (3, 4) und/oder der Membran (2),  
25          an denen der Dichtrand (5, 5') ausgebildet werden soll, vor der  
          Ausbildung des Dichtrands vorbehandelt werden.
35. Verfahren nach Anspruch 34,  
          **dadurch gekennzeichnet,**  
30          daß die Vorbehandlung in einem Benetzen der Bereiche der  
          Elektrode (3, 4), an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll,  
          mit einem Lösungsmittel des Dichtmittels besteht.
36. Verfahren nach Anspruch 34,

**dadurch gekennzeichnet,**

daß die Vorbehandlung in einem Anfräsen der Bereiche der Oberfläche der Elektrode (3, 4), an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll, besteht.

5

37. Verfahren nach Anspruch 34,

**dadurch gekennzeichnet,**

daß die Vorbehandlung in einem teilweisen Oxidieren der Bereiche der Kohlenstoffmaterialien der Elektrode (3, 4), an denen der Dichtrand ausgebildet werden soll, besteht.

10

Fig. 1 1/4

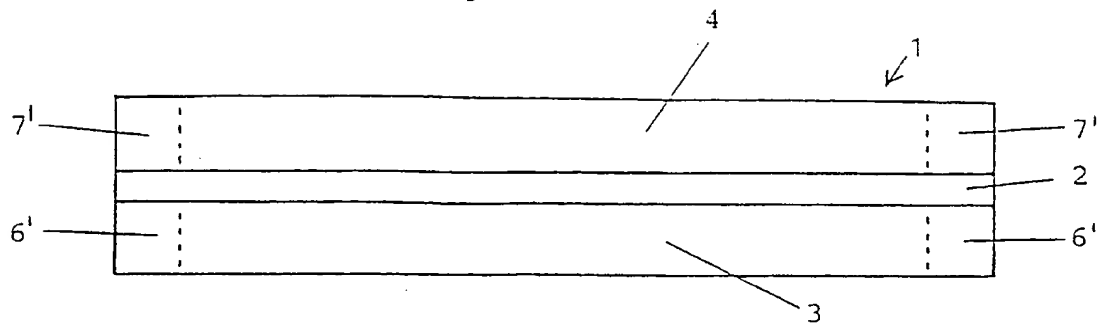


Fig. 2

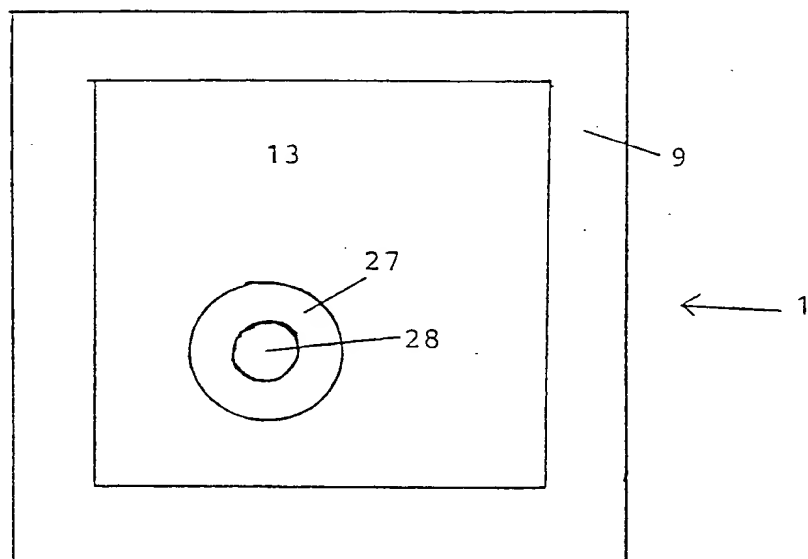


Fig. 3

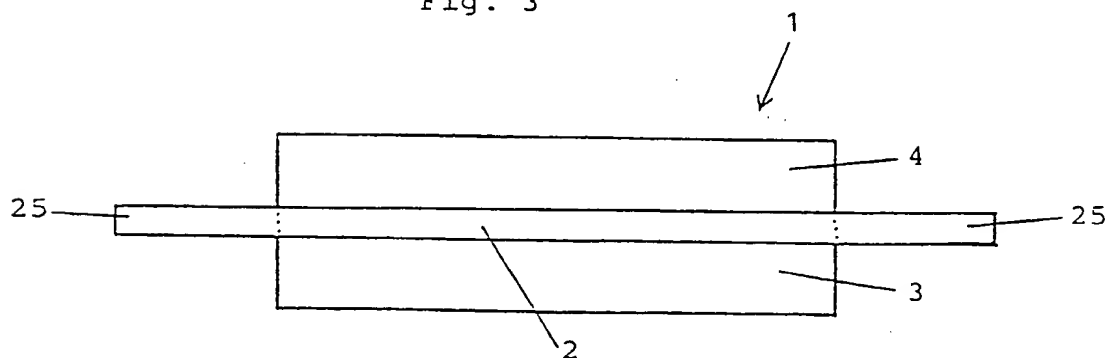


Fig. 4

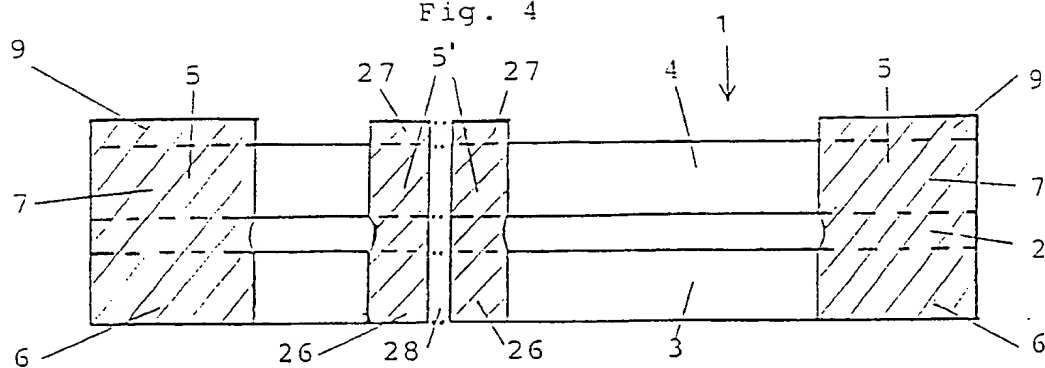


Fig. 5

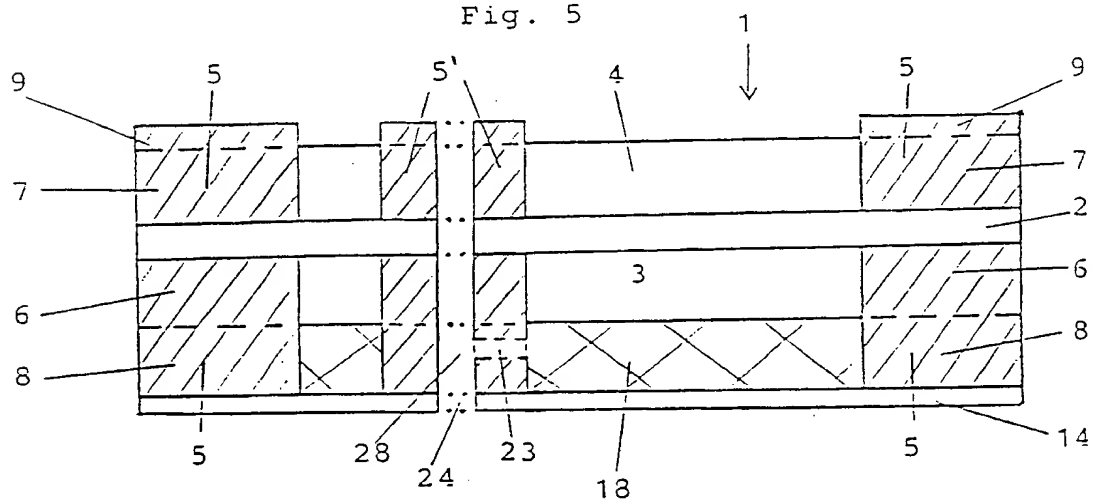
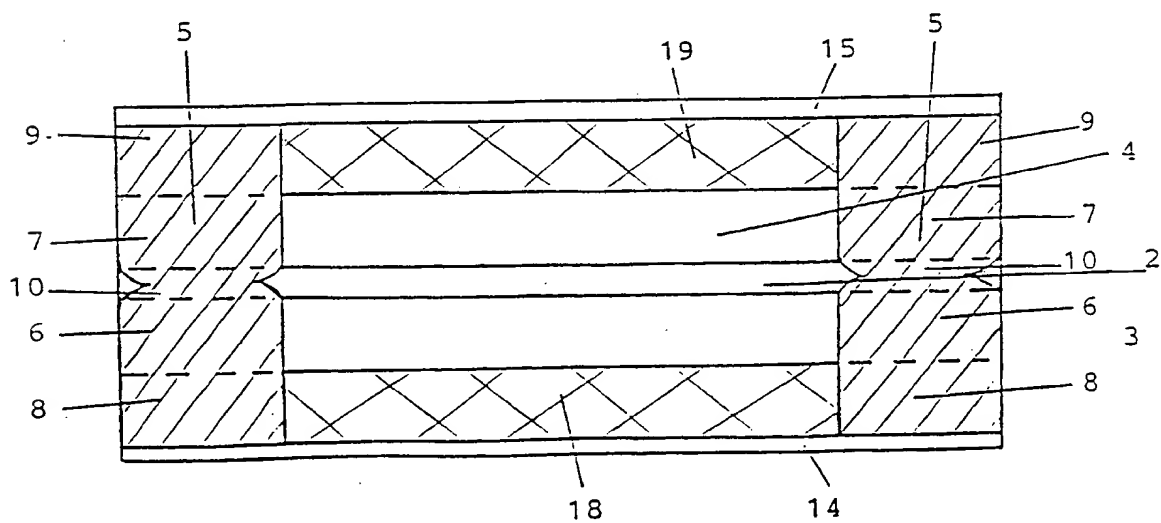


Fig. 6



3/4

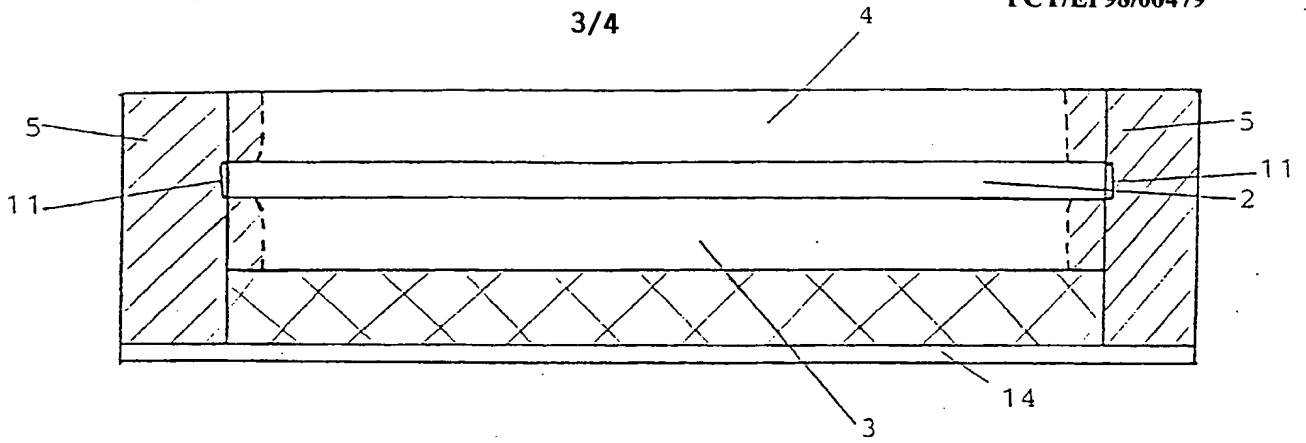


Fig. 8

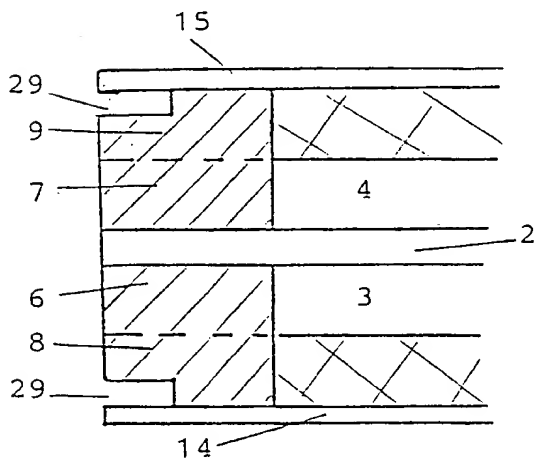


Fig. 9

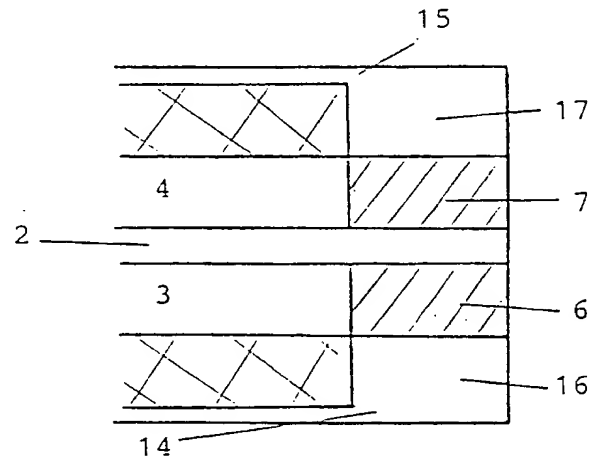


Fig. 12

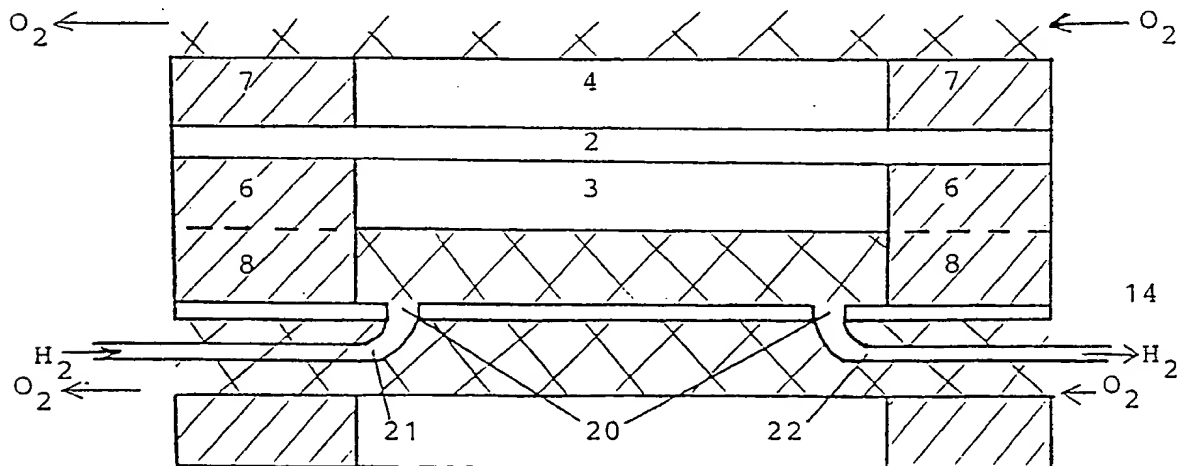




Fig. 10

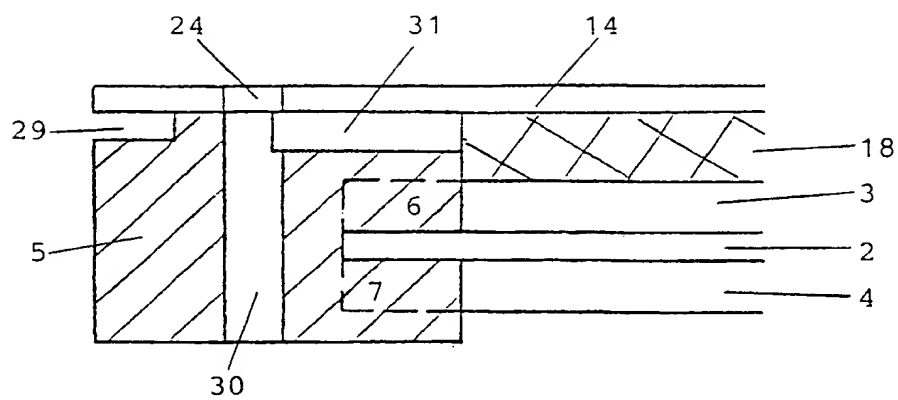
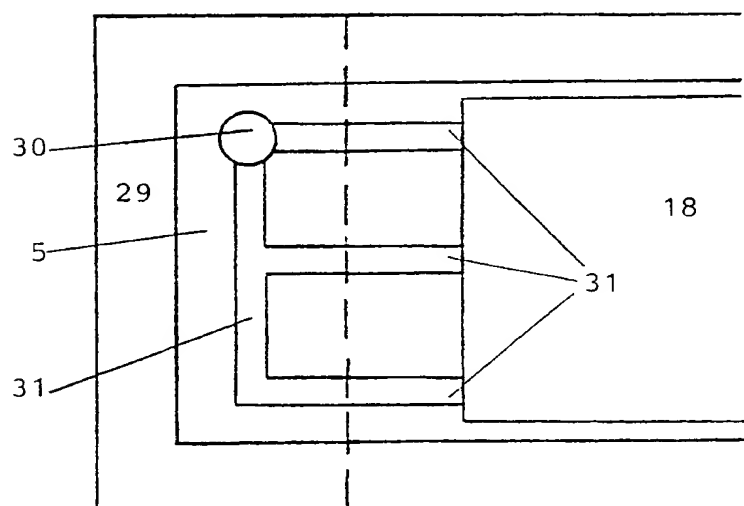


Fig. 11



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

National Application No

PCT/EP 98/00479

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 H01M8/02 H01M8/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 504 752 A (CLC SRL) 23 September 1992 see the whole document ---	1, 11-13, 17
A	EP 0 690 519 A (JAPAN GORE TEX INC) 3 January 1996 see claims 1-6 ---	1-37
A	EP 0 604 683 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 6 July 1994 see claims 1-10 ---	1-37
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 254 (E-772), 13 June 1989 & JP 01 052383 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 28 February 1989, see abstract --- -/--	1-37

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 June 1998

Date of mailing of the international search report

26/06/1998

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Battistig, M

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 98/00479

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>GB 2 236 012 A (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 20 March 1991 see claims 1-21</p> <p>-----</p>	1-37

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/00479

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0504752	A	23-09-1992	US 5178968 A	12-01-1993
			JP 5109417 A	30-04-1993
EP 0690519	A	03-01-1996	JP 8013179 A	16-01-1996
			DE 69500295 D	19-06-1997
			DE 69500295 T	18-12-1997
EP 0604683	A	06-07-1994	NONE	
GB 2236012	A	20-03-1991	US 5096786 A	17-03-1992
			CA 2020641 A	12-03-1991
			IT 1243211 B	24-05-1994
			JP 3105866 A	02-05-1991
			SE 503338 C	28-05-1996
			SE 9002378 A	12-03-1991

# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

ernationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00479

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
IPK 6 H01M8/02 H01M8/24

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )  
IPK 6 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 504 752 A (CLC SRL) 23. September 1992 siehe das ganze Dokument ---	1, 11-13, 17
A	EP 0 690 519 A (JAPAN GORE TEX INC) 3. Januar 1996 siehe Ansprüche 1-6 ---	1-37
A	EP 0 604 683 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 6. Juli 1994 siehe Ansprüche 1-10 ---	1-37
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 254 (E-772), 13. Juni 1989 & JP 01 052383 A (FUJI ELECTRIC CO LTD), 28. Februar 1989, siehe Zusammenfassung ---	1-37
	-/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18. Juni 1998

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

26/06/1998

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P. B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Battistig, M

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr
A	GB 2 236 012 A (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 20. März 1991 siehe Ansprüche 1-21 -----	1-37

# INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00479

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 0504752	A	23-09-1992	US	5178968 A	12-01-1993
			JP	5109417 A	30-04-1993
EP 0690519	A	03-01-1996	JP	8013179 A	16-01-1996
			DE	69500295 D	19-06-1997
			DE	69500295 T	18-12-1997
EP 0604683	A	06-07-1994	KEINE		
GB 2236012	A	20-03-1991	US	5096786 A	17-03-1992
			CA	2020641 A	12-03-1991
			IT	1243211 B	24-05-1994
			JP	3105866 A	02-05-1991
			SE	503338 C	28-05-1996
			SE	9002378 A	12-03-1991

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :**H01M 8/02****A3**(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: **WO 00/02279**

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

13. Januar 2000 (13.01.00)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01890

(22) Internationales Anmeldedatum: 30. Juni 1999 (30.06.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 29 142.6

30. Juni 1998 (30.06.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MAN-  
HATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US]; Olympic Tower,  
Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Petra  
[DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).(74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Lederer, Keller &  
Riederer, Postfach 26 64, D-84010 Landshut (DE).(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB,  
BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI,  
GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE,  
KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG,  
MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE,  
SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN,  
YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD,  
SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG,  
KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH,  
CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL,  
PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN,  
GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

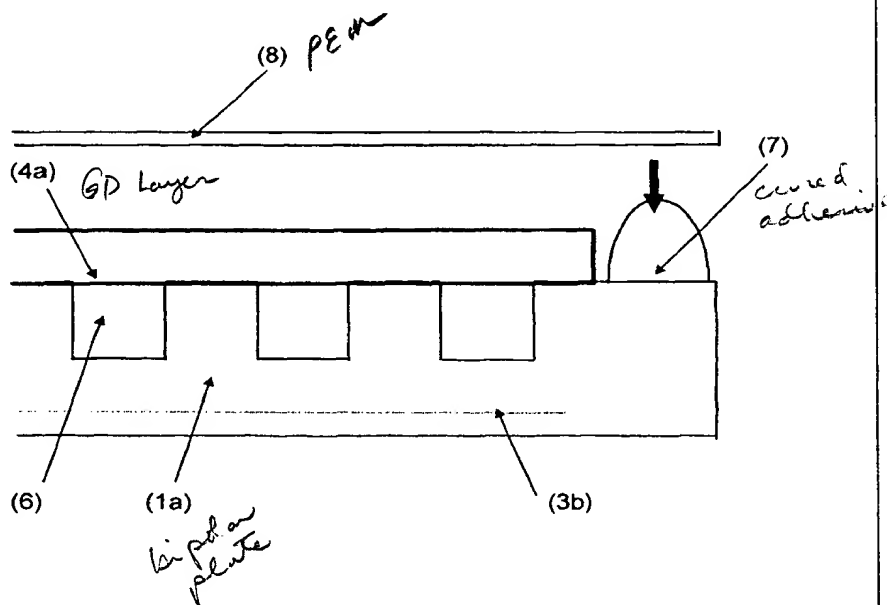
(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchen-  
berichts:

13. April 2000 (13.04.00)

(54) Title: GAS-PROOF ASSEMBLY COMPOSED OF A BIPOLAR PLATE AND A MEMBRANE-ELECTRODE UNIT OF  
POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELLS(54) Bezeichnung: GASDICHTER VERBUND AUS BIPOLARPLATTE UND MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT VON POLY-  
MERELEKTROLYTMEMBRAN-BRENNSTOFFZELLEN

(57) Abstract

According to known methods, gas chambers (6) of fuel cells are sealed by applying pressure. A small space always remains between the electrode and the membrane. According to the inventive sealing method, the bipolar plate (1a) and the membrane (8)- electrode (4) unit are bonded with a curable polymer. A gas-proof assembly is obtained by applying an adhesive bead (7) on the outer periphery of the gas chamber and around the inner gas ducts. These assemblies can be stacked and bonded together according to the present invention to form a stack of polymer electrolyte fuel cells. The inventive assemblies which are composed of a bipolar plate and a membrane-electrode unit can be used in polymer electrolyte fuel cells and in corresponding electrolytic cells. These assemblies have such a small weight that they can be used in mobile devices in a particularly advantageous manner.



## (57) Zusammenfassung

Bei allen bisher bekannten Verfahren wird die Dichtigkeit der Gasräume (6) von Brennstoffzellen unter Anwendung von Anpreßdruck hergestellt. Es verbleibt immer ein kleiner Spalt zwischen Elektrode und Membran. Das erfindungsgemäße Abdichtungsverfahren verklebt jedoch Bipolarplatte (1a) und Membran (8)-Elektroden (4)-Einheit unter Verwendung eines aushärtbaren Polymers. Durch Aufbringen einer Kleberaupe (7) auf den äußeren Umfang des Gasraumes und um die inneren Gasdurchführungen entsteht ein gasdichter Verbund. Bei Stapelung und erfindungsgemäßem Verkleben dieser Verbunde erhält man einen PEM-Brennstoffzellenstack. Die erfindungsgemäßen Verbunde aus Bipolarplatte und MEA eignen sich für die Anwendung in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen und in den entsprechenden Elektrolysezellen. Auch können sie wegen ihres geringen Gewichts in der mobilen Anwendung besonders vorteilhaft eingesetzt werden.

## LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

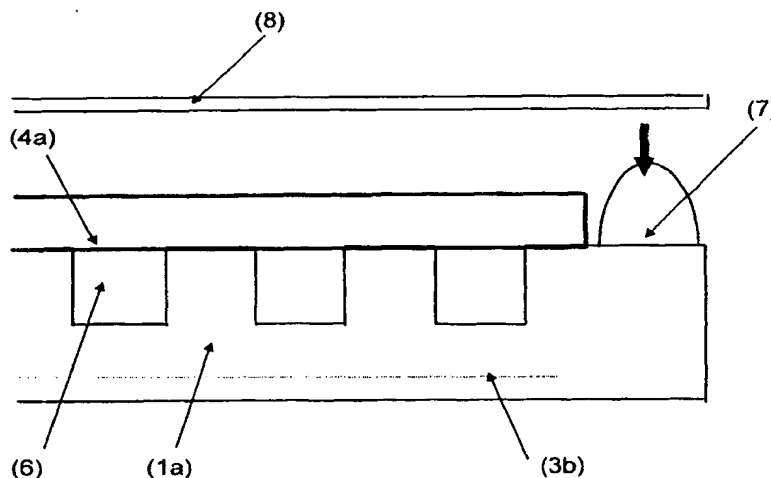
(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>H01M 4/00</b>		A2	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 00/02279</b>
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 13. Januar 2000 (13.01.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01890		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).	
(22) Internationales Anmeldedatum: 30. Juni 1999 (30.06.99)			
(30) Prioritätsdaten: 198 29 142.6 30. Juni 1998 (30.06.98) DE			
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MANHATTAN SCIENTIFICS, INC. [US/US]; Olympic Tower, Suite 36F, 641 Fifth Avenue, New York, NY 10022 (US).			
(72) Erfinder; und			
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOSCHANY, Petra [DE/DE]; Pfarrweg 5, D-94121 Salzweg (DE).			
(74) Anwalt: RIEDERER VON PAAR, Anton; Lederer, Keller & Riederer, Postfach 26 64, D-84010 Landshut (DE).			
		Veröffentlicht <i>Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.</i>	

(54) Title: GAS-PROOF ASSEMBLY COMPOSED OF A BIPOLAR PLATE AND A MEMBRANE-ELECTRODE UNIT OF POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELLS

(54) Bezeichnung: GASDICHTER VERBUND AUS BIPOLARPLATTE UND MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT VON POLY-MERELEKTROLYTMEMBRAN-BRENNSTOFFZELLEN

(57) Abstract

According to known methods, gas chambers (6) of fuel cells are sealed by applying pressure. A small space always remains between the electrode and the membrane. According to the inventive sealing method, the bipolar plate (1a) and the membrane (8)-electrode (4) are bonded with a curable polymer. A gas-proof assembly is obtained by applying an adhesive bead (7) on the outer periphery of the gas chamber and around the inner gas ducts. These assemblies can be stacked and bonded together according to the present invention to form a stack of polymer electrolyte fuel cells. The inventive assemblies which are composed of a bipolar plate and a membrane-electrode unit can be used in polymer electrolyte fuel cells and in corresponding electrolytic cells. These assemblies have such a small weight that they can be used in mobile devices in a particularly advantageous manner.



### (57) Zusammenfassung

Bei allen bisher bekannten Verfahren wird die Dichtigkeit der Gasräume (6) von Brennstoffzellen unter Anwendung von Anpreßdruck hergestellt. Es verbleibt immer ein kleiner Spalt zwischen Elektrode und Membran. Das erfindungsgemäße Abdichtungsverfahren verklebt jedoch Bipolarplatte (1a) und Membran (8)-Elektroden (4)-Einheit unter Verwendung eines aushärtbaren Polymers. Durch Aufbringen einer Kleberaupe (7) auf den äußeren Umfang des Gasraumes und um die inneren Gasdurchführungen entsteht ein gasdichter Verbund. Bei Stapelung und erfindungsgemäßem Verkleben dieser Verbunde erhält man einen PEM-Brennstoffzellenstack. Die erfindungsgemäßen Verbunde aus Bipolarplatte und MEA eignen sich für die Anwendung in Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen und in den entsprechenden Elektrolysezellen. Auch können sie wegen ihres geringen Gewichts in der mobilen Anwendung besonders vorteilhaft eingesetzt werden.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

## **GASDICHTER VERBUND AUS BIPOLARPLATTE UND MEMBRAN - ELEKTRODEN - EINHEIT VON POLYMERELEKTROLYTMEMBRAN - BRENNSTOFFZELLEN**

5

Die vorliegende Erfindung betrifft einen gasdichten Verbund aus Bipolarplatte und Membran-Elektroden-Einheit von Polymerelektrolytmembran (PEM) - Brennstoffzellen und ein Verfahren zu seiner Herstellung.

10

Eine PEM - Brennstoffzelle besteht aus zwei Stromableiterplatten, zwei porösen, katalysierten Gasdiffusionselektroden und einer Ionenaustauschermembran, die zwischen diesen Elektroden angeordnet ist. Die Stromableiterplatten enthalten typischerweise Einrichtungen zur Zuführung und Verteilung der Reaktanden. Da die elektrische Spannung einer einzelnen Zelle für praktische Anwendungen viel zu niedrig ist, müssen eine Mehrzahl solcher Zellen in Reihe geschaltet werden. Bei dem sich daraus ergebenden Brennstoffzellenstapel bzw. -stack werden die aufeinandertreffenden Stromableiterplatten durch sog. Bipolarplatten ersetzt. Eine Bipolarplatte steht mit einer ihrer Oberflächen in elektrischem Kontakt mit der Anode einer Zelle des Stapels, während die gegenüberliegende Oberfläche mit der Kathode der benachbarten Zelle kontaktiert ist. Die Funktion der Bipolarplatten liegt zum einen im Durchleiten des Stroms durch den Stack, zum anderen im Trennen der Reaktionsgase. Auch weisen sie meistens Gasführungsstrukturen z.B. ein Kanalsystem zur besseren Verteilung der Reaktionsgase im Anoden- und Kathodenraum auf.

20

25

Durch Zuführung des typischen Reaktionsgases Wasserstoff an die Anodenseite der Brennstoffzelle werden in der Katalysatorschicht, die den Teil der Anode ausmacht, der mit der Ionenaustauschermembran direkt in Berührung steht, Kationen gebildet und gleichzeitig Elektronen an die Elektronen leitende Anode abgegeben. Als Oxidationsmittel wird typischerweise Sauerstoff (oder Luft) der Kathodenseite der Zelle zugeführt.

30

Durch Aufnahme der durch die Ionenaustauschermembran diffundierten Wasserstoffionen und der durch einen äußeren Stromkreis von der Anode zur Kathode geführten Elektronen wird das Reaktionsgas Sauerstoff reduziert. Diese Reaktion läuft ebenfalls in einer Katalysatorschicht, die den die Membran kontaktierenden Teil der Kathode ausmacht, ab. In den bevorzugten Anwendungsfällen ist die Konzentration des Sauerstoffs in der Luft ausreichend. Als Reaktionsprodukt entsteht Wasser. Die Reaktion-

35

senthalpie wird in Form von elektrischer Energie und Abwärme frei. Die Einheit aus

Membran und Elektroden, einschließlich der jeweiligen Katalysatorschichten, wird als Membran-Elektroden-Einheit (im folgenden MEA - Membrane Electrode Assembly ) bezeichnet. Ob zu den Elektroden Anteile der Gasdiffusionsschicht hinzuzurechnen sind oder ob nur der Katalysator die Elektroden bildet, ist in der Literatur nicht einheitlich geregelt. Im folgenden wird bei einer für das Verständnis notwendigen Unterscheidung gesondert darauf hingewiesen.

Ein wesentliches Problem bei der Konstruktion von Brennstoffzellenstacks ist die dauerhafte Abdichtung des Anodenraums. Aufgrund der hohen Reaktionsfreudigkeit von Wasserstoff ist dies neben guter Energieausnutzung auch aus Sicherheitsgründen notwendig. Wird Luft oder Sauerstoff mit wesentlichem Überdruck verwendet, so muß auch der Kathodenraum abgedichtet werden.

Ein Verfahren, die Gasräume von PEM - Brennstoffzellen abzudichten, besteht in der Fertigung von Dichtungen aus Elastomermaterialien und dem Anordnen dieser Dichtungen zwischen der Polymerelektrolytmembran und den Bipolarplatten, die aus gasdichtem Graphitmaterialien hergestellt sind. Dabei wird die Dichtung in, auf komplizierte Art und Weise hergestellte, Schlitze eingelegt, die eigens dafür in einem Kohlefaserpapier, das als Gasdiffusionsschicht dient, vorgesehen sind. Eine solche Anwendung findet sich beispielsweise in der US - PS 5,284,718.

Die Dichtung kann auch aus einer in der Bipolarplatte integrierten Erhebung, die durch einen Prägevorgang hergestellt ist, gebildet werden. Die Bipolarplatten müssen dann aber aus einem elastischem, plastisch verformbaren und gasdichten Material, z.B. aus Graphitfolien hergestellt sein. Auch hier benötigt die Dichtung erheblichen Druck für die Ausbildung der Dichtwirkung, der von den Spannplatten ausgeübt werden muß. Ein derartiges Verfahren zeigt z.B. DE - OS 195 42 475 A1.

Ein weiteres Abdichtungsverfahren stellt DE - PS 44 42 285 C1 vor, in dem die negative Polplatte, die Membran, die positive Polplatte und zwei Dichtungen am Rand durch ein Rahmenelement gasdicht und elektrisch isolierend miteinander verklemmt werden. Das aus Metall bestehende Rahmenelement kann Teil einer Polplatte sein und besitzt einen U-Profil-Querschnitt. Durch Aufweitung dieses U - Profils bei der Montage entsteht der Anpreßdruck.

Auch ist es möglich, wie EP - PS 0 690 519 A1 zeigt, eine Einheit aus einer Flächen-  
dichtung und der Ionenaustauschermembran herzustellen. Die aus porösem Polyte-  
trafluorethylen bestehende Dichtung ist auf beiden Seiten der Membran angebracht  
und umgibt den mit Katalysator beschichteten Teil der Membran als eine Art Rahmen.

5

Alle bisher bekannten Abdichtungsverfahren weisen folgende Nachteile auf:

Bei Verwendung von Elastomerdichtungen werden häufig dünne Membranen durch die  
Längenänderung des Elastomers (z.B. Silikon ) beim Zusammenspannen zerrissen.

Aufgrund der unterschiedlichen, verwendeten Materialien bei Bipolarplatten und Dich-  
10 tung besteht auch die Gefahr, daß es bei Inbetriebnahme zu Undichtigkeiten kommt, da  
sich bei Erwärmung die verschiedenen Materialien unterschiedlich ausdehnen.

Viele andere Dichtungssystemen benötigen am Dichtrand erheblichen Anpreßdruck,  
um die notwendige Dichtwirkung zu erreichen. Dies hat zur Folge, daß die Spannplat-  
ten größer dimensioniert werden müssen und somit den gesamten Stack schwerer ma-  
15 chen, was nachteilig für die mobile Anwendung ist. Bei Verwendung von Klemmele-  
menten am Rahmen entsteht zusätzliches Gewicht durch relativ dickwandige Metalltei-  
le.

Die Abstimmung zwischen der Dicke der Elektroden und der Bipolarplatten und der  
Dicke der Dichtung ist äußerst schwierig, da beide, Elektroden und Dichtung, geeigne-  
20 ten Anpreßdruck benötigen, aber unterschiedliche Elastizitäten aufweisen. Die tollerier-  
baren Dickenabweichungen sind sehr klein. Diese Anforderung führt zu aufwendigen  
Herstellungsverfahren, die sehr kostenintensiv sind.

Bei allen bekannten Verfahren gibt es nach Zusammenbau einen kleinen Spalt zwi-  
schen Elektrode und Membran, denn die Dichtung muß größer als die Elektrode aus-  
25 geschnitten werden. Daraus folgt eine erhöhte Gefahr von Rißbildung in der Membran,  
besonders bei stark quellenden und sehr dünnen Membranen wie z.B. bei Membranen  
aus sulfoniertem Polyetherketon.

Nachteilig ist bei den meisten Systemen ferner, daß die Dichtigkeit erst beim Zusam-  
menbau der einzelnen Brennstoffzellen zu einem Stack geprüft werden kann. Die Or-  
30 tung von Undichtigkeiten ist somit nur im kompletten Stack möglich, nicht in den einzel-  
nen Zellen. Zur Qualitätssicherung bedarf es dadurch der Konzeption aufwendiger  
Verfahren.

Mit der vorliegenden Erfindung können alle oben aufgeführten Nachteile vermieden werden.

Aufgabe der Erfindung ist es, einen gasdichten Verbund aus MEA und der Wasserstoffseite einer Bipolarplatte bereitzustellen.

Weiterhin ist es Aufgabe der Erfindung, ein einfaches, kostengünstiges Verfahren zur Herstellung eines derartigen Verbundes aufzuzeigen.

Zusätzlich ist es Aufgabe der Erfindung, einen vollständigen Brennstoffzellenstapel aus erfindungsgemäßen Einheiten von MEA's und Bipolarplatten darzulegen, der Gasdurchführungen durch die Bipolarplatte und auch einen abgedichteten Kathodenraum enthält.

Aufgabe der Erfindung ist es darüberhinaus, ein Verfahren zur Herstellung dieses Brennstoffzellenstapels anzugeben.

Eine Lösung dieser Aufgaben bietet der gasdichte Verbund aus Membran-Elektroden-Einheit und Bipolarplatten gemäß Anspruch (1), der Brennstoffzellenstack nach Anspruch (12), das Verfahren zur Herstellung des Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (15) und das Verfahren zur Herstellung des Brennstoffzellenstack nach Anspruch (26).

Bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung finden sich in den jeweiligen Unteransprüchen.

Der gasdichte Verbund aus Membran-Elektroden-Einheit und Bipolarplatte wird durch ein technisch unkompliziertes Klebverfahren erstellt. Dies geschieht erfindungsgemäß dadurch, daß als Dichtmaterial ein oder mehrere aushärtbare Polymere (Klebstoffe) verwendet werden. Um auf einfache Weise einen gasdichten Verbund aus Bipolarplatte und Membran herstellen zu können, muß der Kleber auf der Bipolarplatte und auf der Membran, die evtl. mit einem Katalysator versehen ist, haften. Die Wirksamkeit der Edelmetallkatalysatoren und die Leitfähigkeit der Membran darf weder während des Aushärtungsvorgangs noch im ausgehärtetem Zustand durch flüchtige Stoffe beeinträchtigt werden.

Es existieren jedoch einige, erstaunlicherweise sogar handelsübliche Klebstoffe, die diese Anforderungen erfüllen. Bei Verwendung von Metallbipolarplatten eignen sich



bevorzugt Silikone als Klebedichtmasse. Sie haften gut auf nahezu allen Metallen und auf den gängigen perfluorierten oder nichtfluorierten, evtl. auch mit Katalysator versehenen Membrantypen. Werden Graphitbipolarplatten oder Composites aus Graphit und Polymeren eingesetzt, so kann entweder Epoxidharz mittlerer Viskosität oder wiederum Silikon als Klebedichtung verwendet werden. Im letzteren Fall ist allerdings auf der Bipolarplatte eine Haftvermittlungsschicht aus einem dünnen Epoxidharzfilm auf der möglichst aufgerauhten Oberfläche der Bipolarplatte anzubringen. Dieser Epoxidharzfilm kann mittels Siebdruck, Sprühverfahren oder Pinseln aufgebracht werden. Ist ein besonders dünner Film erwünscht, so kann z.B. das zweikomponentige Epoxidharzprodukt Körapox 439 (Kömmerring GmbH) zuvor mit niederen Alkoholen z.B. Ethanol verdünnt werden.

Für alle Arten von Bipolarplatten eignen sich zur Verklebung besonders die Produkte Elastosil E 41 und E 43 (Wacker Chemie AG). Aufgrund von massiven Vergiftungserscheinungen an den aktiven Zentren von Katalysator und Membran ist das Zweikomponentige Epoxidharz Stykast W19 (Grace N.V., Belgien) nicht geeignet. Die Viskosität des Klebers liegt zwischen 10.000 mPas und 500.000 mPas, bevorzugt zwischen 60.000 mPas und 350.000 mPas. Eine leicht thixotrope Konsistenz kann von Vorteil sein.

Zunächst soll die Abdichtung des Wasserstoffgasraumes dargestellt werden, die bevorzugt durchgeführt wird. Bei der Herstellung eines gasdichten Verbundes von Bipolarplatte und Membranelektroden - Einheit muß unterschieden werden, ob im Aufbau der PEM - Brennstoffzelle eine komplette MEA verwendet wird, d.h. eine Membran mit zwei Katalysatorschichten und mit mindestens der Anoden - Gasdiffusionsschicht oder ob es sich um katalysierte Membranen mit aufgelegter Anoden - Gasdiffusionsschicht handelt. Im folgenden wird zunächst die Vorgehensweise bei Auswahl einer katalysierten Membranen mit nur aufgelegter Anoden - Gasdiffusionsschicht beschrieben. Die dabei gemachten Angaben zur Breite des Dichtrandes, zur Dicke der Gasdiffusionsschicht und zur Überlappung zwischen Gasdiffusionsschicht und Bipolarplatte gelten bevorzugt für alle, noch darzustellenden Klebeverfahren.

Bevorzugt verwendet man, wie in **Fig. 1** dargestellt, eine Bipolarplatte (**1**) mit Gasdurchführungsbohrungen für das Reduktionsmittel Wasserstoff (**2a**) und evtl. das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft (**2b**), mit Gasverteilungsstruktur z.B. einer Kanalstruktur (**3**) und umlaufendem, nicht strukturierten Dichtrand, dessen Breite zwischen

0.1 mm und 10 mm, bevorzugt zwischen 1 mm und 5 mm, besonders bevorzugt zwischen 2 mm und 3 mm liegt. Bevorzugt, aber nicht notwendig, liegen die Erhebungen der Kanalstruktur auf derselben Ebene wie der Dichtrand. Die zu verwendende Gasdiffussionsschicht (4) mit typischer Dicke zwischen 0.1 mm und 0.5 mm wird auf die Bipolarplatte positioniert und mit einer Haltevorrichtung fixiert. Besonders vorteilhaft kann die Positionierung mit Hilfe von Stiften in den Gasdurchführungen durch Bipolarplatte und Gasdiffusionsschicht erfolgen. Die Gasdiffusionsschicht muß dazu an den der Bipolarplatte entsprechenden Stellen Aussparungen aufweisen. Bevorzugt wird eine Gasdiffusionsschicht verwendet, die etwas größer ist als der mit Kanalstruktur versehene Bereich der Bipolarplatte. Die Überlappung zwischen Gasdiffusionsschicht und Bipolarplatte (5) liegt zwischen 0.1 mm und 5 mm, bevorzugt zwischen 0.3 mm und 0.8 mm. Nach Auswahl eines geeigneten Klebers zur Abdichtung des Wasserstoffraums (6) wird, wie in Fig. 2 dargestellt, eine Kleberaupe (7), die bevorzugt höher ist als die Gasdiffusionsschicht des Wasserstoffraums (4a) auf den Teil der Bipolarplatte aufgetragen, dessen Oberfläche mit der Anode in Kontakt steht (1a) und deren Gasverteilungsstruktur für Sauerstoff oder Luft (3a) hier nur angedeutet ist. Das Volumen des aufgetragenen Klebers wird bevorzugt so bemessen, daß der Spalt zwischen der Oberfläche der Gasdiffusionsschicht und dem Dichtrand vollständig gefüllt wird. Die Kleberaupe wird mit geeigneten Dosiervorrichtungen dergestalt aufgebracht, daß sie die Oberfläche der Gasdiffusionsschicht überragt und am Dichtrand so positioniert, daß sie die Gasdiffusionsschicht gerade eben berührt oder knapp vor dieser endet. Durch Auflegen der katalysierten Membran (8) wird die Dichtraupe dann so deformiert, daß sie den gesamten Spalt zwischen Bipolarplatte und Membranunterseite füllt und der Kleber zumindest bis an die Stirnflächen der Gasdiffusionsschicht reicht und bevorzugt sogar über Distanzen von < 1 mm in die Gasdiffusionsschicht eindringt. Die so aufgelegte Membran kann eben auf der Gasdiffusionsschicht liegen oder im Bereich der Dichtraupe sogar leicht erhöht sein.

Um die dünne, katalysierte Membran auf die Bipolarplatte mit Gasdiffusionsschicht und Kleberaupe eben aufzulegen, bedient man sich zweckmäßigerweise ebenfalls einer Hilfskonstruktion, nämlich eines beweglichen Vakuumspanntisches. Dieser kann ähnlich einer Bipolarplatte aus einem Kanalsystem bestehen, das durch ein poröses Kohlfaserpapier abgedeckt ist. Durch Erzeugung eines Unterdrucks in diesem Kanalsystem kann eine Membran eben aufgespannt und zusammen mit dem Vakuumspanntisch auf die Bipolarplatte mit Gasdiffusionsschicht und Kleberaupe aufgesetzt werden. Bevor-

zugt enthält auch die Membran und evtl. der Vakuumspanntisch an denselben Positionen wie die Bipolarplatte Bohrungen, die später zur Gasdurchführung durch die einzelnen Zellen eines Stacks dienen.

Anschließend muß der Kleber je nach Art seiner Zusammensetzung unter den entsprechenden Bedingungen, beispielsweise bei leichter Temperaturerhöhung oder bei Raumtemperatur, ausgehärtet werden.

Nun ist es möglich, den so hergestellten Verbund aus Bipolarplatte und Membran auf seine Dichtigkeit zu prüfen und bei Bedarf auch eine Funktionsprüfung dieser einzelnen Brennstoffzelle vorzunehmen. Die Funktionsprüfung erfolgt bevorzugt dadurch, daß der Verbund aus Bipolarplatte und MEA mit einer geeigneten Luftführungsstruktur aus Graphit zusammengespannt wird und die somit vollständige Einzelzelle zumindest mit Luft nahe dem Umgebungsdruck betrieben werden kann.

Falls eine Membran, auf der die Gasdiffusionsschichten haften, verwendet werden soll, existiert ebenfalls eine Möglichkeit der Abdichtung des Wasserstoffgasraums zwischen Bipolarplatte und MEA. Die MEA muß dazu einen freien, d.h. nicht von der Gasdiffusionsschicht bedeckten Rand aufweisen. Die Kleberaupe wird dann nicht auf die Bipolarplatte, sondern bevorzugt direkt auf die MEA, die vorteilhaft auf einem geeigneten Vakuumspanntisch aufgespannt ist, aufgetragen. Die so vorbereitete MEA kann dann zusammen mit dem Vakuumspanntisch auf die Bipolarplatte aufgesetzt werden.

Wie in **Fig. 3** dargestellt ist, können Gasdurchführungen für das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft (**2b**) durch den Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Anode in Kontakt steht (**1a**) analog, wie für die beiden Arten von MEA bereits beschrieben, gegen den Wasserstoffraum (**6**) gedichtet werden.

Um aus mehreren erfindungsgemäßen Einheiten aus Bipolarplatte und MEA einen Brennstoffzellenstack herzustellen, der auch mit Sauerstoff oder Luft unter Überdruck betrieben werden kann, können diese Einheiten miteinander luft- und wasserstoffdicht analog dem obigen, erfindungsgemäßen Verfahren folgendermaßen (vgl **Fig 4** und **Fig. 5**) verklebt werden:

Bevorzugt wird zunächst ein Verbund aus Bipolarplatte und MEA einschließlich kathodenseitiger Gasdiffusionsschicht (**4b**), die am Rand und um die Wasserstoffdurchführung Membranfläche für eine Kleberaupe freiläßt, bereitgestellt. Eine Kleberaupe (**7**)

wird, wie oben beschrieben, bevorzugt am Umfang der Membran **Fig. 4)** und um die Wasserstoffdurchführungen (**Fig. 5)** aufgebracht. Eine weitere Einheit aus Bipolarplatte und MEA wird mit dem Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Kathoden in Kontakt steht (**1b)**, auf die Kleberaupe aufgesetzt. Der Kleber wird anschließend unter geeigneten Bedingungen ausgehärtet. Die Kleberaupe am Umfang der Membran dichtet die evtl. unter Überdruck stehende Luft gegen den Außenraum ab, während die Kleberaupe um die Wasserstoffdurchführung verhindert, daß Wasserstoff in den Kathodenraum eindringt.

Bei Betrieb mit Luft nahe dem Umgebungsdruck kann auf die, in Fig. 4 dargestellte Abdichtung am äußeren Umfang des Luftraumes verzichtet werden.

Falls Durchführungsbohrungen für Kühlmedien oder Spannelemente vorgesehen sind, können diese gegen Anoden- und Kathodenraum nach Maßgabe von Fig. 3 und zugleich Fig. 5 abgedichtet werden.

Die Vorteile des erfindungsgemäßen Klebverfahrens liegen in der Vermeidung von Spalten zwischen Dichtung und Gasdiffussionsschichten. Weiterhin bedarf es keines großen Anpreßdrucks, da dieser durch die Adhäsionskräfte der Klebung ersetzt wird. Weder Dichtung noch Elektroden müssen mit geringen Maßtoleranzen gefertigt, auch der Querschnitt der Gaszuführungen kann beliebig gewählt werden. Dichtetests und zumindest Funktionstest mit Luft unter Umgebungsdruck sind für die Einzelzellen möglich. Es entsteht nahezu kein zusätzliches Gewicht durch die Klebedichtung. Eine kostengünstige, industrielle Fertigung ist somit möglich.

**BEZUGSZEICHENLISTE**

**(1)** Bipolarplatte

**(1a)** Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Anode in Berührung steht

5 **(1b)** Teil der Bipolarplatte, dessen Oberfläche mit der Kathode in Berührung steht

**(2)** Gasdurchführungsbohrungen

**(2a)** Gasdurchführung für das Reduktionsmittel Wasserstoff

**(2b)** Gasdurchführung für das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft

**(3)** Gasverteilungsstruktur z.B. Kanalstruktur

10 **(3a)** Gasverteilungsstruktur für Wasserstoff

**(3b)** Gasverteilungsstruktur für Sauerstoff

**(4)** Gasdiffusionsschicht

**(4a)** Gasdiffusionsschicht des Wasserstoffraums

**(4b)** Gasdiffusionsschicht des Sauerstoffraums

15 **(5)** Überlappung zwischen Gasdiffusionsschicht und Bipolarplatte

**(6)** Wasserstoffraum

**(7)** Kleberaupe

**(8)** Membran

20

25

30

## ANSPRÜCHE

1. Verbund aus Bipolarplatte und MEA

**dadurch gekennzeichnet, daß**

der freie, nicht von Gasdiffusionsschichten bedeckte katalysierte oder nicht katalysierte Membranrand einer MEA mit der Bipolarplatte gasdicht verklebt ist.

2. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (1)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Wasserstoffseite der Bipolarplatte mit der Anodenseite der MEA verklebt ist

3. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (2)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

der Kleber in Form einer Dichtraupe aufgetragen wurde die höher ist als die Gasdiffusionsschicht.

4. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (3)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

das Volumen der aufgetragenen, nicht ausgehärteten Dichtraupe so bemessen wurde, daß sie genau den Klebspalt füllt.

5. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (4)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

das Klebematerial 0.2 mm bis 1 mm die Gasdiffusionsschicht durchdringt.

6. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (5)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Klebung mit einem aushärtbaren Silikon oder einem Epoxydharz durchgeführt ist.

7. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (6)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Bipolarplatte und/oder die Membran im Bereich des Dichtrandes mit einem Haftvermittler vorbehandelt ist.

8. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (7)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Gasdiffussionsschicht den Dichtrand der Bipolarplatte um 0.1 bis 5 mm überlappt

5

9. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (8)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

Dichtrand und Oberfläche der Gasverteilungsstruktur der Bipolarplatte auf einer Ebene liegen.

10

10. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (9)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

zur Positionierung der MEA mit oder ohne Gasdiffussionsschichten auf die Bipolarplatte ein Vakuumspanntisch verwendet wurde.

15

11. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (10)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

Anoden- und/oder Kathodengasdurchführungen vorgesehen sind, von denen mindestens eine, welche das Gas führt, das nicht in den Gasraum des Verbundes eindringen soll durch Klebung abgedichtet ist.

20

12. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA

**dadurch gekennzeichnet, daß**

der freie, nicht von Gasdiffusionsschichten bedeckte katalysierte oder nicht katalysierte Membranrand einer MEA mit der Bipolarplatte gasdicht verklebt wird.

25

13. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch (12)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Wasserstoffseite der Bipolarplatte mit der Anodenseite der MEA verklebt wird.

30

14. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (13)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

der Kleber in Form einer Dichtraupe aufgetragen wird, die höher ist als die Gasdiffusionsschicht.

15. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (14)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

das Volumen der aufgetragenen, nicht ausgehärteten Dichtraupe so bemessen wird, daß sie genau den Klebspalt füllt.

16. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (15)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

das Klebematerial 0.2 mm bis 1 mm in die Gasdiffusionsschicht eindringt.

17. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (16)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Klebung mit einem aushärtbaren Silikon oder einem Epoxydharz durchgeführt wird.

18. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (17)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Bipolarplatte und/oder die Membran im Bereich des Dichtrandes mit einem Haftvermittler vorbehandelt wird.

19. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (18)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

die Gasdiffusionsschicht den Dichtrand der Bipolarplatte um 0.1 bis 5 mm überlappt.

20. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (19)

**dadurch gekennzeichnet, daß**



Dichtrand und Oberfläche der Gasverteilungsstruktur der Bipolarplatte auf einer Ebene liegen.

21. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (20)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

zur Positionierung der MEA mit oder ohne Gasdiffusionsschichten auf die Bipolarplatte ein Vakuumspanntisch verwendet wird.

22. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (12) bis (21)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

Anoden- und/oder Kathodengasdurchführungen vorgesehen sind, von denen mindestens eine, welche das Gas führt, das nicht in den Gasraum des Verbundes eindringen soll Zelle durch Klebung abgedichtet wird.

23. Anwendung des Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (11) in Brennstoffzellenstacks und / oder Stacks aus Elektrolysezellen.

24. Anwendung nach Anspruch (23),

**dadurch gekennzeichnet, daß**

mehrere Verbunde aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche (1) bis (11) durch Stapelung elektrisch in Serie geschaltet sind.

25. Anwendung nach Anspruch (23)

**dadurch gekennzeichnet, daß**

der in den Verbunden aus Bipolarplatte und MEA noch nicht gedichtete Gasraum am Umfang und/oder an den entsprechenden Gasdurchführungen wiederum an einer Seite der Bipolarplatte eines Verbundes mit der entsprechenden Seite der MEA eines zweiten Verbundes mittels des Verfahrens nach einem der Ansprüche (12) bis (22) abgedichtet wird.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/01890

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
IPC 7 H01M8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 03, 27 February 1998 (1998-02-27) -&amp; JP 09 289029 A (TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK), 4 November 1997 (1997-11-04) abstract -&amp; DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 1998-030061 XP002128385 abstract -&amp; CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 128, no. 5, 2 February 1998 (1998-02-02) Columbus, Ohio, US; abstract no. 50707, YANAGIHARA: "Structure of sealings and cooling means for solid polymer electrolyte fuel cells and fuel cell stacks"</p> <p style="text-align: center;">-/--</p>	1,2,12, 13,23-25

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 January 2000

Date of mailing of the international search report

03/02/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/01890

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	XP002128384 abstract	6,17
P,X	--- EP 0 918 362 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 26 May 1999 (1999-05-26)  column 7, line 55 -column 8, line 7; claims 1,5,6; figure 2 column 9, line 1 - line 22	1,2,6, 12,13, 17,23-25
P,Y	---	6,17
P,X	GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30 September 1998 (1998-09-30)  claims 1,2,4-10,12,16; figures 2,3 page 17, line 13 - line 20 page 10, line 8 page 11, last paragraph -page 15, paragraph 2 page 10, line 16 - line 18	1-6,8,9, 11-17, 19,20, 22-25
Y	---	6,17
X	WO 94 25995 A (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 10 November 1994 (1994-11-10) page 16, line 23 -page 17, line 27; figures 4,7 page 22, line 30 -page 23, line 6	1,2,12, 13,23-25
P,X	WO 98 33225 A (MAGNET MOTOR GMBH ;KOSCHANY ARTHUR (DE); SCHWESINGER THOMAS (DE)) 30 July 1998 (1998-07-30)  claims 15-17,19,20 page 13, paragraph 1 -page 14, paragraph 1; figure 5 page 15, line 24 -page 16, line 7 page 18, line 17 - line 20 page 19, last paragraph -page 20, paragraph 1; figure 10	1,2,5,6, 9,11-13, 16,17, 20,22-25
P,Y	---	6,17
P,X	DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10 December 1998 (1998-12-10) claims 1,3,4; figure 3 column 5, line 5 - line 24; figure 3 --- -/--	1

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/01890

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1995, no. 06, 31 July 1995 (1995-07-31) -& JP 07 065847 A (KANSAI ELECTRIC POWER CO INC:THE;OTHERS: 01), 10 March 1995 (1995-03-10) abstract ---	6
A	EP 0 331 128 A (INT FUEL CELLS CORP) 6 September 1989 (1989-09-06) column 5, line 40 -column 6, line 26; claim 3; figure 3 ---	10,21
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 008, no. 135 (E-252), 22 June 1984 (1984-06-22) -& JP 59 046767 A (TOKYO SHIBAURA DENKI KK), 16 March 1984 (1984-03-16) abstract ---	1
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 08, 29 August 1997 (1997-08-29) -& JP 09 097619 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD), 8 April 1997 (1997-04-08) abstract ---	1
A	US 5 187 025 A (KELLAND JAMES W ET AL) 16 February 1993 (1993-02-16) column 3, line 1 - line 15; figure 2 -----	1

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

PCT/DE 99/01890

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 09289029	A	04-11-1997	NONE	
EP 0918362	A	26-05-1999	JP 11154522 A	08-06-1999
GB 2323700	A	30-09-1998	DE 19713250 A	15-10-1998
			CA 2233440 A	29-09-1998
WO 9425995	A	10-11-1994	DE 4314745 C	08-12-1994
			DE 59404537 D	11-12-1997
			EP 0698300 A	28-02-1996
			JP 8509571 T	08-10-1996
			US 5733678 A	31-03-1998
WO 9833225	A	30-07-1998	DE 19703214 C	05-11-1998
			AU 6617298 A	18-08-1998
			EP 0966770 A	29-12-1999
DE 19823880	A	10-12-1998	FR 2764122 A	04-12-1998
			GB 2326017 A	09-12-1998
			SE 9801942 A	04-12-1998
JP 07065847	A	10-03-1995	NONE	
EP 0331128	A	06-09-1989	US 4786568 A	22-11-1988
			CA 1309132 A	20-10-1992
			DK 95589 A	02-09-1989
			JP 1283771 A	15-11-1989
			JP 2842606 B	06-01-1999
			US 4845840 A	11-07-1989
JP 59046767	A	16-03-1984	NONE	
JP 09097619	A	08-04-1997	NONE	
US 5187025	A	16-02-1993	NONE	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01890

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
IPK 7 H01M8/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 03, 27. Februar 1998 (1998-02-27) -&amp; JP 09 289029 A (TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK), 4. November 1997 (1997-11-04) Zusammenfassung -&amp; DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 1998-030061 XP002128385 Zusammenfassung -&amp; CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 128, no. 5, 2. Februar 1998 (1998-02-02) Columbus, Ohio, US; abstract no. 50707, YANAGIHARA: "Structure of sealings and cooling means for solid polymer electrolyte fuel cells and fuel cell stacks" -/-</p>	1,2,12, 13,23-25



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. Januar 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

03/02/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01890

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie <sup>a</sup>	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	XP002128384 Zusammenfassung	6,17
P,X	--- EP 0 918 362 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 26. Mai 1999 (1999-05-26)  Spalte 7, Zeile 55 -Spalte 8, Zeile 7; Ansprüche 1,5,6; Abbildung 2 Spalte 9, Zeile 1 - Zeile 22	1,2,6, 12,13, 17,23-25
P,Y	--- GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30. September 1998 (1998-09-30)  Ansprüche 1,2,4-10,12,16; Abbildungen 2,3 Seite 17, Zeile 13 - Zeile 20 Seite 10, Zeile 8 Seite 11, letzter Absatz -Seite 15, Absatz 2 Seite 10, Zeile 16 - Zeile 18	6,17
Y	--- WO 94 25995 A (FRAUNHOFER GES FORSCHUNG ;LEDJEFF KONSTANTIN (DE); NOLTE ROLAND (D) 10. November 1994 (1994-11-10) Seite 16, Zeile 23 -Seite 17, Zeile 27; Abbildungen 4,7 Seite 22, Zeile 30 -Seite 23, Zeile 6	6,17
X	--- WO 98 33225 A (MAGNET MOTOR GMBH ;KOSCHANY ARTHUR (DE); SCHWESINGER THOMAS (DE)) 30. Juli 1998 (1998-07-30)  Ansprüche 15-17,19,20 Seite 13, Absatz 1 -Seite 14, Absatz 1; Abbildung 5 Seite 15, Zeile 24 -Seite 16, Zeile 7 Seite 18, Zeile 17 - Zeile 20 Seite 19, letzter Absatz -Seite 20, Absatz 1; Abbildung 10	1,2,12, 13,23-25
P,X	--- DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10. Dezember 1998 (1998-12-10) Ansprüche 1,3,4; Abbildung 3 Spalte 5, Zeile 5 - Zeile 24; Abbildung 3	1,2,5,6, 9,11-13, 16,17, 20,22-25
P,Y	--- DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10. Dezember 1998 (1998-12-10) Ansprüche 1,3,4; Abbildung 3 Spalte 5, Zeile 5 - Zeile 24; Abbildung 3	1,2,5,6, 9,11-13, 16,17, 20,22-25
P,X	--- DE 198 23 880 A (MOTOROLA INC) 10. Dezember 1998 (1998-12-10) Ansprüche 1,3,4; Abbildung 3 Spalte 5, Zeile 5 - Zeile 24; Abbildung 3	1,2,5,6, 9,11-13, 16,17, 20,22-25
	--- -/--	6,17
	---	1



## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1995, no. 06, 31. Juli 1995 (1995-07-31) -& JP 07 065847 A (KANSAI ELECTRIC POWER CO INC:THE;OTHERS: 01), 10. März 1995 (1995-03-10) Zusammenfassung ---	6
A	EP 0 331 128 A (INT FUEL CELLS CORP) 6. September 1989 (1989-09-06) Spalte 5, Zeile 40 -Spalte 6, Zeile 26; Anspruch 3; Abbildung 3 ---	10,21
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 008, no. 135 (E-252), 22. Juni 1984 (1984-06-22) -& JP 59 046767 A (TOKYO SHIBAURA DENKI KK), 16. März 1984 (1984-03-16) Zusammenfassung ---	1
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 08, 29. August 1997 (1997-08-29) -& JP 09 097619 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD), 8. April 1997 (1997-04-08) Zusammenfassung ---	1
A	US 5 187 025 A (KELLAND JAMES W ET AL) 16. Februar 1993 (1993-02-16) Spalte 3, Zeile 1 - Zeile 15; Abbildung 2 -----	1

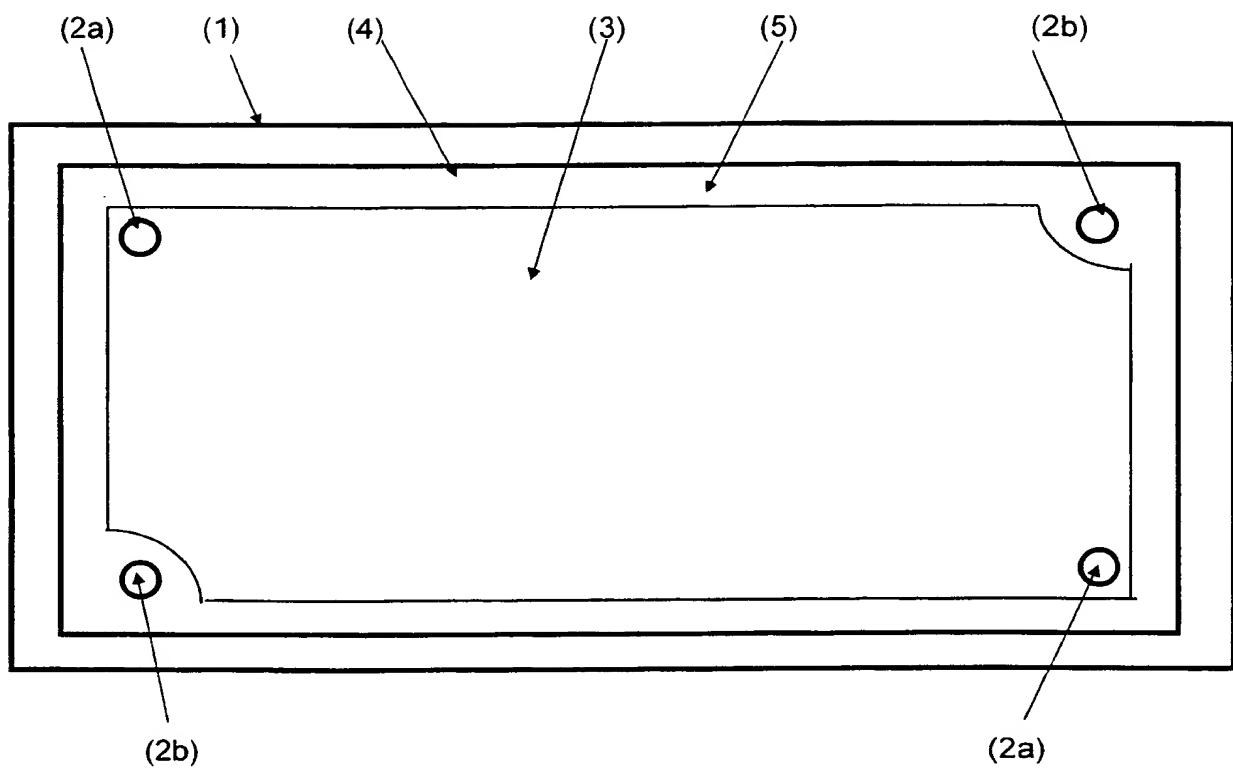
# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

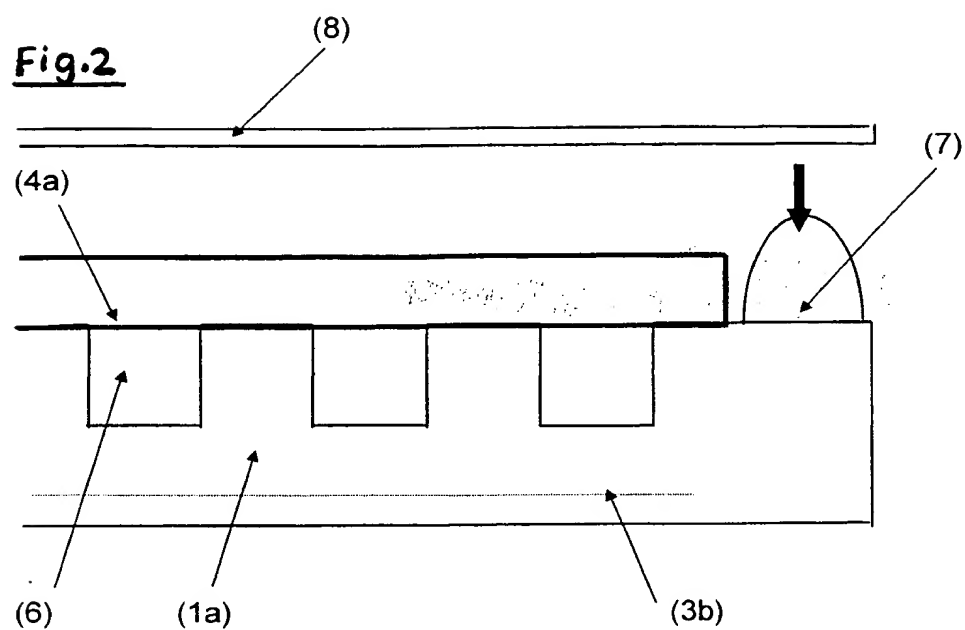
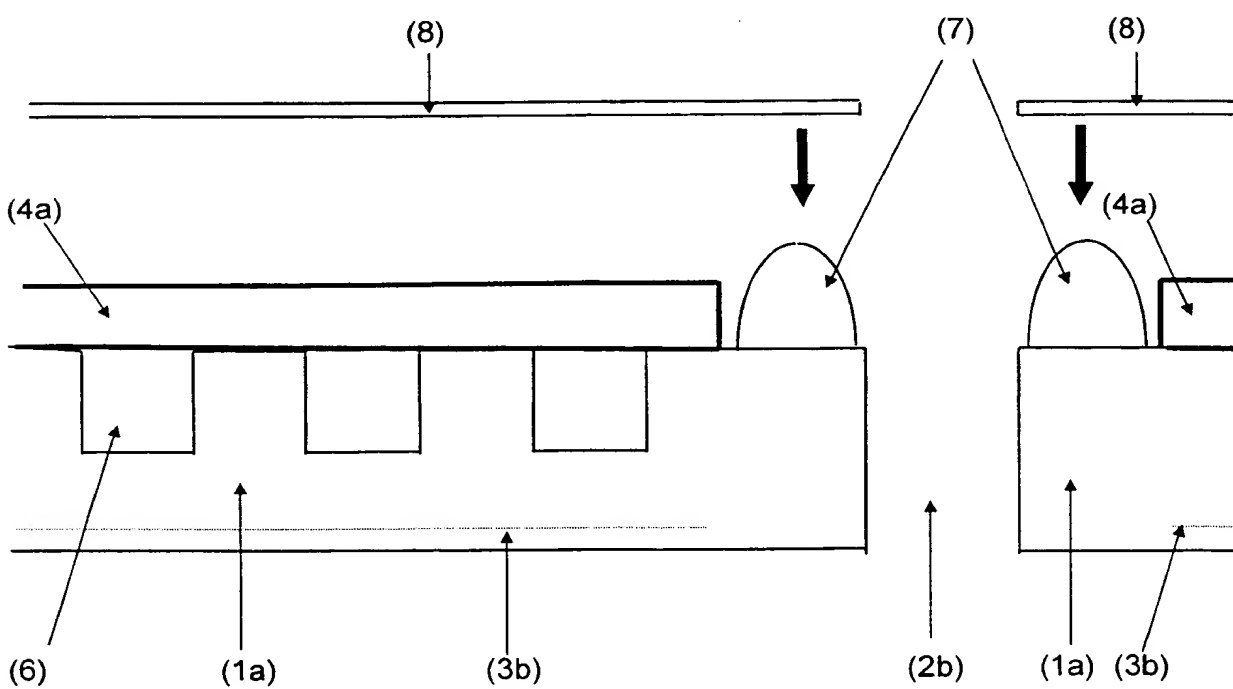
Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01890

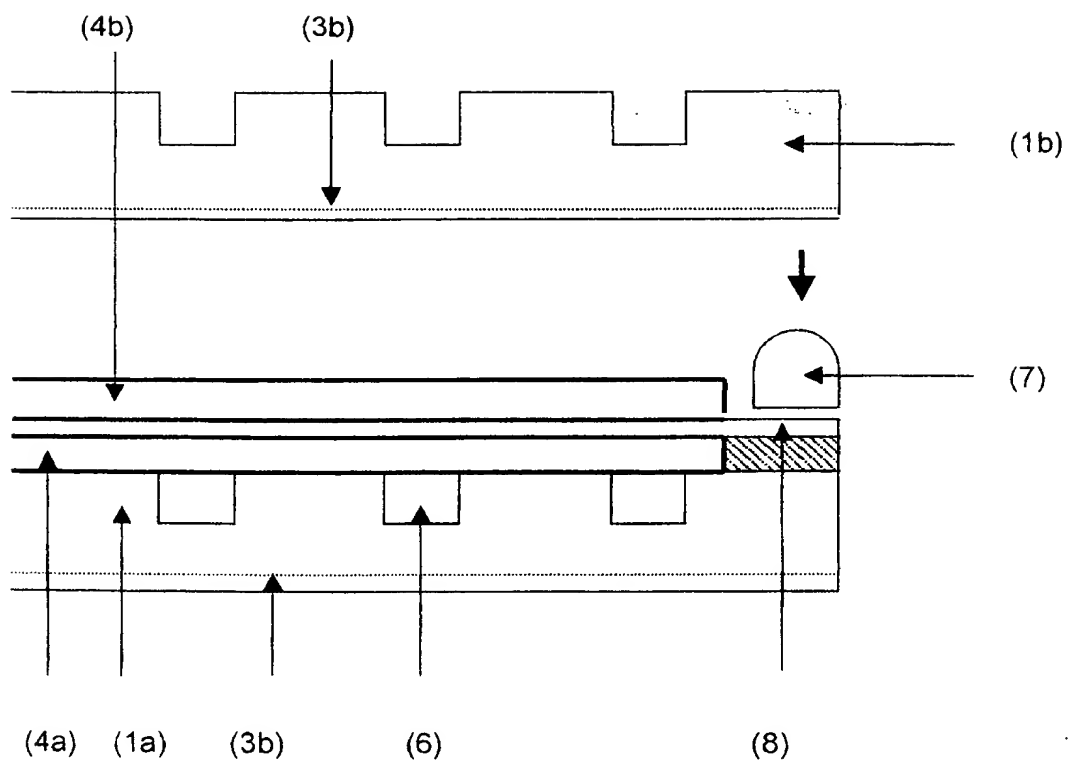
Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
JP 09289029	A	04-11-1997	KEINE		
EP 0918362	A	26-05-1999	JP	11154522 A	08-06-1999
GB 2323700	A	30-09-1998	DE	19713250 A	15-10-1998
			CA	2233440 A	29-09-1998
WO 9425995	A	10-11-1994	DE	4314745 C	08-12-1994
			DE	59404537 D	11-12-1997
			EP	0698300 A	28-02-1996
			JP	8509571 T	08-10-1996
			US	5733678 A	31-03-1998
WO 9833225	A	30-07-1998	DE	19703214 C	05-11-1998
			AU	6617298 A	18-08-1998
			EP	0966770 A	29-12-1999
DE 19823880	A	10-12-1998	FR	2764122 A	04-12-1998
			GB	2326017 A	09-12-1998
			SE	9801942 A	04-12-1998
JP 07065847	A	10-03-1995	KEINE		
EP 0331128	A	06-09-1989	US	4786568 A	22-11-1988
			CA	1309132 A	20-10-1992
			DK	95589 A	02-09-1989
			JP	1283771 A	15-11-1989
			JP	2842606 B	06-01-1999
			US	4845840 A	11-07-1989
JP 59046767	A	16-03-1984	KEINE		
JP 09097619	A	08-04-1997	KEINE		
US 5187025	A	16-02-1993	KEINE		

**Fig.1**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

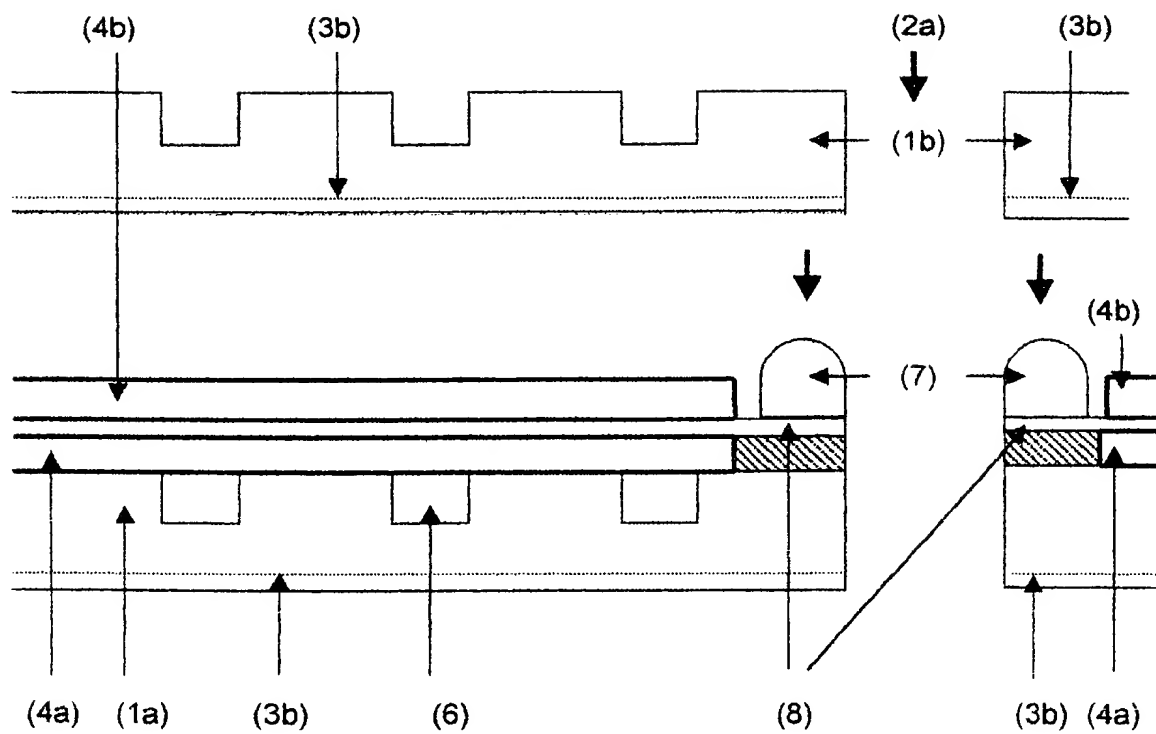
**Fig.2****Fig.3**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**Fig.4**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**Fig.5**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

# PCT

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts	<b>WEITERES VORGEHEN</b>	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
PCT/DE 99/ 01890	30/06/1999	30/06/1998
Anmelder		
MANHATTAN SCIENTIFICS, INC.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 4 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

### 1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

### 4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

### 5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 2

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ keine der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE 99/01890

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

(ii) The introduction of the expression "adhesive edge", that is feature "3a" (see, in particular, page 6, lines 6-9), as depicted in the new Figures 1 and 2, can be assumed to be implicitly disclosed in the original documents. In this respect, reference sign "3a" in line 16 of the original page 6 of Figures 2-5 should read "3b" instead.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE 99/01890

**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: **Box II.2: Priority**

The priority of 30 June 1998 was rightly claimed for the  
subject matter of the present Claims 1-15.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/DE 99/01890

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

## 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

(i) On the basis of the English abstracts of the document cited in the international search report, document JP-A-09 289 029 (D1a), which can be regarded as the closest prior art, discloses an SPE membrane fuel cell stack using an adhesive or a pre-shaped, plaster-like adhesive frame (18) in order to seal the gas chambers. The subject matter of Claim 1 differs therefrom in that the gas diffusion plates (10) are not explicitly characterised as bipolar plates. However, a person skilled in the art generally knows that the cells in the stack are electrically connected in series. Especially as a result of the construction with end plates (27) in Figure 9 of D1, there is no longer any doubt that the plates (10) must be bipolar. The membrane electrolyte assembly (16) is depicted in Fig. 9 of D1. It can also be recognised from Figs. 3 and 9 of D1 that the free membrane edges of each membrane electrolyte assembly are glued to the plates (10) on both sides.

Nevertheless, there is another difference, which is a true difference. D1 does **not** clearly show that the volume defined in the present Claim 1 is filled up to its boundary surfaces with a solidified adhesive, **without leaving any gaps**, although the same volume depicted in Figures 1 and 3 of D2 (that is, with the same top, inner

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

and bottom edges) should be regarded as **gas-tight** at these edges in the state of readiness for operation at the beginning of its service life.

The subjects of the present Claims 1-15 are therefore novel over D1.

Unlike the present application, neither D1 nor the other international search report citations recognise the problem of a gap between the outer edge of the gas diffusion layer and the seal, that is in the area of this gap, the membrane does not lie on the seal or the gas diffusion layer, and is therefore not supported. During service life of the cell, and owing to the considerable extension and shrinkage to which the membrane is repeatedly subjected, such gaps are often the starting point for rents in the membrane which may cause destruction of the cell. This is prevented by the new above-mentioned feature of the present Claim 1, since in the absence of a gap the membrane is totally supported. At the same time, no additional sealing elements are required, as in document JP-07 065 847 (D3; see, e.g., Fig. 1 and 2), and therefore a simple, economical process for producing such a composite structure is achieved. Consequently, the requirements of PCT Article 33(2)-(4) are met.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE 99/01890

## VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

Although Claim 1 is drafted in the two-part form, the feature that the volume defined therein is "gas-tight" is incorrectly included in the characterising part (PCT Rule 6.3(b)), since it was disclosed in document D1 in conjunction with the features indicated in the preamble (see Box V.2).

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE 99/01890

## VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

The reference sign "6" in line 4 of Claim 6 is not correct, since it indicates the hydrogen chamber (see, e.g., page 6, lines 12-13, or page 7, line 25, of the original application).

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



09/1720657  
Q2  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/DE99/01890	International filing date (day/month/year) 30 June 1999 (30.06.99)	Priority date (day/month/year) 30 June 1998 (30.06.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01M 8/02		
Applicant MANHATTAN SCIENTIFICS, INC.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>17</u> sheets.</p>		RECEIVED MAR 13 2001 TECHNOLOGY CENTER 1700
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input checked="" type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input checked="" type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input checked="" type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>		

Date of submission of the demand 28 January 2000 (28.01.00)	Date of completion of this report 19 October 2000 (19.10.2000)
Name and mailing address of the IPEA/O	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE99/01890

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages \_\_\_\_\_, as originally filed,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
pages 1-10, filed with the letter of 14 August 2000 (14.08.2000),  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the claims, Nos. \_\_\_\_\_, as originally filed,  
Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
Nos. 1-15, filed with the letter of 14 August 2000 (14.08.2000),  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
sheets/fig 1/4-4/4, filed with the letter of 14 August 2000 (14.08.2000),  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☒ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

**See the Supplemental Box.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE99/01890

## II. Priority

1. ☐ This report has been established as if no priority had been claimed due to the failure to furnish within the prescribed time limit the requested:
- ☐ copy of the earlier application whose priority has been claimed.
  - ☐ translation of the earlier application whose priority has been claimed.
2. ☐ This report has been established as if no priority had been claimed due to the fact that the priority claim has been found invalid.

Thus for the purposes of this report, the international filing date indicated above is considered to be the relevant date.

3. Additional observations, if necessary:

**See the supplemental box.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE99/01890

## VI. Certain documents cited

### 1. Certain published documents (Rule 70.10)

Application No.  
Patent No.

Publication date  
(day/month/year)

Filing date  
(day/month/year)

Priority date (valid claim)  
(day/month/year)

### 2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

Kind of non-written disclosure

Date of non-written disclosure  
(day/month/year)

Date of written disclosure  
referring to non-written disclosure  
(day/month/year)

See the supplemental box.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**I. Basis of the report**

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

**Box I.3: Inadmissible amendments**

(i) Statements concerning the subject matter of the invention (e.g. further details regarding the advantages of the invention or the problem addressed) but which have no basis in the original document can only be mentioned in the letter of response but not included in the application. In this respect, although the problem discussed in Box V.2 represents a basis for the recognition of inventive step, the evaluation of the prior art in the description, page 4, paragraph 3, goes largely beyond the substantive disclosure in those documents. This evaluation therefore contravenes PCT Article 34(2)(b).

The subject matter of the statement on page 6, lines 27-29, represents an attempt to define a different gap. In this respect, the statement on page 6, lines 16-18 of the original description concerns the whole gap between the surface of the gas diffusion layer and the sealing edge, not a smaller gap between the outer edge of the gas diffusion layer and the **finally solidified adhesive**. As a result, this statement also contravenes PCT Article 34(2)(b).

**Box I.4: admissible amendments**

(i) The newly added features of the present Claim 1 are based on Figures 2 and 4 or 5 in conjunction with the disclosure on page 6, lines 16-25 and page 8, lines 17-18, of the original application, while the subject matter of Claim 7 is based on the originally filed Figures 3 and 5.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

TENT COOPERATION TRI Y

BEST AVAILABLE COPY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents  
 United States Patent and Trademark  
 Office  
 Box PCT  
 Washington, D.C.20231  
 ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing (day/month/year)</b> 01 March 2000 (01.03.00)	
<b>International application No.</b> PCT/DE99/01890	<b>Applicant's or agent's file reference</b>
<b>International filing date (day/month/year)</b> 30 June 1999 (30.06.99)	<b>Priority date (day/month/year)</b> 30 June 1998 (30.06.98)
<b>Applicant</b> KOSCHANY, Petra	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

28 January 2000 (28.01.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<b>The International Bureau of WIPO</b> 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	<b>Authorized officer</b>  Christelle Croci
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

REPLACED BY  
ACT 34, 1987

09/720657  
PCT/PTO 28 DEC 2000

**GAS-TIGHT ASSEMBLY COMPOSED OF A BIPOLAR PLATE  
AND A MEMBRANE-ELECTRODE UNIT OF  
POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE FUEL CELLS**

The present invention relates to a gas-proof assembly composed of a bipolar plate and a membrane-electrode unit of polymer electrolyte membrane (PEM) fuel cells and a method for its production.

A PEM fuel cell consists of two current collector plates, two porous, catalyzed gas diffusion electrodes and an ion exchange membrane which is arranged between these electrodes. The current collector plates typically include devices for feeding and distributing the reactants. Since the electric voltage of a single cell is much too low for practical applications, a plurality of such cells have to be connected in series. In the resulting fuel cell pile or stack, the current derivation plates that coincide are replaced by so-called bipolar plates. A bipolar plate, with one of its surfaces, is electrically connected to the anode of a cell of the stack, while the opposite surface is in contact with the cathode of the neighboring cell. The function of the bipolar plates is, on the one hand, to conduct the current through the stack, and on the other hand to separate the reaction gases. Furthermore, they are also usually equipped with gas conveying structures, such as a channel system, for better distribution of the reaction gases in the anode zone and the cathode zone.

By feeding the typical reaction gas hydrogen to the anode side of the fuel cell, cations are generated in the catalyst layer that forms that part of the anode which is in direct

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

contact with the ion exchange membrane, and at the same time electrons are passed on to the electron conducting anode. The oxidizing agent that is typically used is oxygen (or air), which is fed to the cathode side of the cell. The reaction gas oxygen is reduced by absorbing both the hydrogen ions that have diffused through the ion exchange membrane and the electrons that are fed from the anode to the cathode via an external circuit. This reaction also takes place in a catalyst layer that forms that part of the cathode which is in contact with the membrane. In preferred applications, the oxygen concentration in the air is sufficient. The reaction product is water. Reaction enthalpy is released in the forms of electric energy and of waste heat. The unit of the membrane and the electrodes, including the respective catalyst layers, is termed the membrane electrode assembly (MEA) in the following. It has not yet been uniformly established in the literature whether the electrodes include portions of the gas diffusion layer or whether only the catalyst forms the electrodes. In the following, this will be pointed out should a differentiation be required for better understanding.

A considerable problem in the design of fuel cell stacks is the permanent seal of the anode zone. Due to the high avidity of hydrogen, this feature is required not only for achieving good utilization of energy, but also for safety reasons. If air or oxygen is used at excess pressure, the cathode zone must be sealed as well.

One method for sealing the gas chambers of PEM fuel cells consists of the production of seals with elastomer materials and the arrangement of these seals between the polymer electrolyte

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



membrane and the bipolar plates, which are made of gas-proof graphite materials. To accomplish this, the seal is placed in slots that have been manufactured in a complicated process and that are provided for, exclusively for this purpose, in a carbon fiber paper which serves as a gas diffusion layer. Such an application can be found, for example, in US-PS 5,284,718.

The seal can also be formed by an elevation that is integrated in the bipolar plate and is formed by a stamping process. In this case, however, the bipolar plates will have to be made of an elastic, plastically deformable and gas-tight material, e.g. of graphite foils. Also, the seal requires, in this case, considerable pressure for achieving the sealing effect, which must be exercised by the clamping plates. Such a method is described e.g. in DE-OS 195 42 475 A1.

Another sealing method is presented in DE-PS 44 42 285 C1, wherein the negative polar plate, the membrane, the positive polar plate and two seals are clamped with each other at the periphery by a frame element in a gas-tight and electrically insulating manner. The frame element, which consists of metal, can be part of a polar plate and has a U cross-section. By expanding this U section element during assembly, the necessary pressing forces are generated.

It is also possible to manufacture a unit from a seal layer and the ion exchange membrane, as shown in EP-PS 0 690 519 A1. The seal layer, which consists of porous polytetrafluoroethylene, is applied to the membrane on both sides and surrounds the part of the membrane that is coated with the catalyst like a frame.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

All sealing methods known so far present the following disadvantages:

If elastomer seals are employed, thin membranes frequently rupture at the clamping step due to the change in length of the elastomer (e.g., silicone).

The usage of different materials for the bipolar plates and the seals also causes the risk that leaks occur upon start-up because the different materials have different degrees of expansion when warming up.

Many other sealing systems require considerable pressure on the peripheral sealing edge in order to achieve the necessary sealing effect. This means that the clamping plates have to have larger dimensions and thus make the entire stack heavier, which is disadvantageous for mobile applications. The use of clamping elements at the frame generates additional weight due to metal parts with relatively thick walls.

Mutual adjustment of the thicknesses of the electrodes and the bipolar plates and the thickness of the seal is extremely difficult because both the electrodes and the seal require suitable pressure, but have different degrees of elasticity. Tolerable thickness deviations are very small. This requirement leads to complex manufacturing procedures, which are very cost-intensive.

In all known methods, there is, after assembling, a little gap between the electrode and the membrane for the reason that the seal must be cut out larger than the electrode. The result is an increased risk for the formation of cracks in the membrane,

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

especially in case of heavily swelling membranes and very thin membranes, such as membranes made of sulfonated polyetherketone.

Another disadvantage with most of the systems is that the tightness can not be checked before assembling the single fuel cells to a stack. Thus, finding out about the place of leakages is only possible in the complete stack but not in the single cells. Securing the quality thus requires the conception of extensive processes.

By means of the present invention, all of the above disadvantages can be avoided.

It is an object of the invention to provide a gas-tight assembly of an MEA and the hydrogen side of a bipolar plate.

Another object of the invention is to teach a simple, cheap method for manufacturing such assembly.

An additional object of the invention is to teach a complete fuel cell stack of units of MEAs and bipolar plates according to the invention, which stack has gas conducts passing through the bipolar plate and also contains a sealed cathode zone.

In addition, it is an object of the invention to teach a method for producing this fuel cell stack.

A solution of these objects is offered by the gas-tight assembly of membrane-electrode-unit and bipolar plates according to claim (1), the fuel cell stack according to claim (12), the method for producing the assembly of bipolar plate and MEA according to claim (15), and the method for producing the fuel cell stack according to claim (26).

Preferred versions of the invention can be found in the respective sub-claims.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

The gas-proof assembly composed of the membrane electrode assembly and the bipolar plate is produced by a technically uncomplicated gluing process. This takes place, according to the invention, by employing one or several curable polymers (adhesives) for the sealing material. In order to be able to manufacture a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and a membrane in a simple manner, the adhesive must adhere to the bipolar plate and the membrane, which may be equipped with a catalyst. The effectiveness of noble metal catalysts and the conductivity of the membrane must not be impaired, neither during the curing process nor in the cured state, by volatile substances.

Some adhesives, surprisingly even commercial adhesives that meet these requirements are available. When utilizing metal bipolar plates, silicones are preferably suited as sealing adhesives. They adhere well to nearly all metals and to common perfluorinated and non-fluorinated membrane types that may or may not be equipped with a catalyst. When graphite bipolar plates or composites made of graphite and polymers are used, either epoxy resin of mean viscosity or again silicone can be employed as the adhesive sealant. In the latter, however, a bonding agent layer consisting of a thin epoxy resin coat must be applied to the preferably roughened bipolar plate surface. This epoxy resin coat can be applied through silk screen printing, spraying or brushing. If a particularly thin coat is desired, the two-component epoxy resin product Kōrapox 439 (Kōmmerling GmbH) can e.g. be diluted prior to the process with low alcohols, such as ethanol.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



The products Elastosil E 41 and E 43 (Wacker Chemie AG) are particularly suited for gluing all kinds of bipolar plates. Due to massive poisoning symptoms on the active centers of the catalyst and the membrane, the two-component epoxy resin Stykast W 19 (Grace N.V., Belgium) is not suited. The viscosity of the adhesive is between 10,000 mPas and 500,000 mPas, preferably between 60,000 mPas and 350,000 mPas. A slightly thixotrope consistency can be advantageous.

At first, the sealing of the hydrogen chamber 6 will be explained, which is a preferred application. When manufacturing a gas-proof assembly composed of bipolar plate and membrane electrode unit, a distinction must be made as to whether a complete MEA is used in the design of the PEM fuel cell, i.e. one membrane with two catalyst layers and with at least the anode gas diffusion layer, or whether catalyzed membranes with applied anode gas diffusion layers are used. The following at first describes the method if having selected a catalyzed membrane with an only applied anode gas diffusion layer. The information provided regarding the width of the sealing edge, the thickness of the gas diffusion layer and the overlapping between the gas diffusion layer and bipolar plate applies preferably to all gluing methods that are still to be presented.

Preferably, as shown in Fig. 1, a bipolar plate 1 is used, with gas conduct bores for the reducing agent hydrogen (2a) and possibly for the oxidizing agent oxygen or air (2b), with a gas distribution structure, e.g. a channel structure (3), and with a circumferential, non-structured sealing edge (3a), whose width is between 0.1 mm and 10 mm, preferably between 1 mm and 5 mm,

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

particularly preferred between 2 mm and 3 mm. Preferably, but not necessarily, the elevations of the channel structure are in the same plane as the sealing edge. The gas diffusion layer (4) with a typical thickness between 0.1 mm and 0.5 mm is positioned on the bipolar plate and fastened by a fastening device. In a particularly beneficial version, the positioning can be done with the help of pins in the gas conducts through the bipolar plate and the gas diffusion layer. For this, the gas diffusion layer must be equipped with openings in those areas that correspond to the bipolar plate. A gas diffusion layer is preferably used that is slightly larger than the area of the bipolar plate which area is equipped with the channel structure. The overlapping area between the gas diffusion layer and the bipolar plate (5) is between 0.1 mm and 5 mm, preferably between 0.3 mm and 0.8 mm. After selecting a suitable adhesive for sealing the hydrogen chamber (6), as shown in Fig. 2, an adhesive bead (7), which preferably is higher than the gas diffusion layer of the hydrogen chamber, is applied to the part of the bipolar plate the surface of which is in contact with the anode (1a), the gas diffusion structure for oxygen or air (3a) being here indicated only. The volume of the adhesive that is applied is preferably dimensioned in such a way that the gap between the surface of the gas diffusion layer and the sealed margin is filled completely. The adhesive bead is applied with suitable metering devices in such a way that it protrudes over the surface of the gas diffusion layer and is positioned on the sealing edge in such a way that it just barely touches the gas diffusion layer or ends just before it. By applying the catalyzed membrane (8), the adhesive bead is then

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

deformed in such a way that it fills the entire gap between the bipolar plate and the membrane bottom surface and that the adhesive reaches at least the fronts of the gas diffusion layer and preferably even penetrates  $< 1$  mm into the gas diffusion layer. The membrane applied this way can be plane on the gas diffusion layer or also be slightly elevated in the area of the sealing bead.

In order to place the thin, catalyzed membrane plane onto the bipolar plate with the gas diffusion layer and the adhesive bead, it is useful to also employ an auxiliary device, specifically a moveable vacuum clamping table. Similar to a bipolar plate, it can be equipped with a channel system, which is covered by a porous carbon fiber paper. By generating negative pressure in this channel system, a membrane can be clamped flush and can be placed onto the bipolar plate having the gas diffusion layer and the adhesive bead, together with the vacuum clamping table. In a preferred version, also the membrane and possibly the vacuum clamping table are equipped with bores in the same positions as is the bipolar plate, which bores later on are used for conducting gas through the individual cells of a stack.

Subsequently, the adhesive must be cured at the appropriate conditions based on its composition, for example at slightly elevated temperatures or at room temperature.

Now it is possible to check the assembly composed of the bipolar plate and the membrane and obtained this way for leakage and also, if required, to perform functional testing of this individual fuel cell. The functional test is preferably performed by clamping the assembly of bipolar plate and MEA together with a

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

suitable air conduction structure made of graphite and operating the thus completed cell at least with air close to ambient pressure.

If a membrane to which the gas diffusion layers adhere is to be used, there is also a possibility available to seal the hydrogen chamber between the bipolar plate and the MEA. For this, the MEA must be equipped with a clear edge, i.e. not covered by the gas diffusion layer. The adhesive bead then is not applied onto the bipolar plate, but preferably directly onto the MEA, which in a beneficial version is clamped on a suitable vacuum clamping table. The MEA prepared this way can be placed onto the bipolar plate together with the vacuum clamping table.

As shown in Fig. 3, also the gas conducts for the oxidizing agent oxygen or air (2b), passing through the part of the bipolar plate whose surface is in contact with the anode (1a), can be sealed against the hydrogen chamber (6) in the way that has already been described for the two kinds of MEA.

In order to be able to produce a fuel cell stack from several assemblies of the invention composed of the bipolar plate and MEA, which stack can also be operated with oxygen or air at excess pressure, these assemblies can be glued together in an airtight and hydrogen-tight manner while following the above-described method of the invention (compare Fig. 4 and Fig. 5), in the following way:

Preferably, initially an assembly composed of the bipolar plate and the MEA, including the cathode side gas diffusion layer (4b), which leaves some area on the membrane at the margin and around the hydrogen conduct for the adhesive bead, is prepared.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



An adhesive bead 7 is preferably applied, as described above, on the circumference of the membrane (Fig. 4) and around the hydrogen conducts (Fig. 5). Another assembly composed of a bipolar plate and an MEA is placed onto the adhesive bead with the part of the bipolar plate whose side 1b is in contact with the cathode. The adhesive is then cured under appropriate conditions. The adhesive bead on the circumference of the membrane seals the air, which can have excessive pressure, against the outer atmosphere, while the adhesive bead around the hydrogen conduct prevents that hydrogen can penetrate into the cathode area.

During operation with air close to ambient pressure, the seal depicted in Fig. 4 on the outer circumference of the air chamber can be dispensed with.

If through-holes for cooling media or clamping elements are provided, they can be sealed against the anode zone and cathode zone in the manner shown in Fig. 3 and also in Fig. 5.

The benefits of the gluing method of the invention are that the gaps between the seal and the gas diffusion layers are avoided. Furthermore, no high pressure is required since it is replaced with the adhesion force of the gluing process. Neither the seal nor the electrodes must be manufactured at tight dimensional tolerances, and the cross-sections of the gas conducts can also be selected randomly. Leakage tests and at least functional tests with air at ambient pressure are possible for the individual cells. The glued seal generates nearly no additional weight. Therefore, cost-effective industrial production is possible.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## REFERENCE LIST

- (1) Bipolar Plate
  - (1a) Side of the bipolar plate that is in contact with the anode
  - (1b) Side of the bipolar plate that is in contact with the cathode
- (2) Gas conducts
  - (2a) Gas conduct for the reducing agent hydrogen
  - (2b) Gas conduct for the oxidizing agent oxygen or air
- (3) Gas distribution structure, e.g. channel structure
  - (3a) Gas distribution structure for hydrogen
  - (3b) Gas distribution structure for oxygen
- (4) Gas diffusion layer
  - (4a) Gas diffusion layer of the hydrogen chamber
  - (4b) Gas diffusion layer of the oxygen chamber
- (5) Overlap between the gas diffusion layer and the bipolar plate
- (6) Hydrogen chamber
- (7) Adhesive bead
- (8) Membrane

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## PATENT CLAIMS

1. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA, characterized in that the free edge of the MEA, which edge is not covered by gas diffusion layers and is equipped or is not equipped with a catalyst, is glued to the bipolar plate in a gas-tight manner.

2. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with Claim (1), characterized in that the hydrogen side of the bipolar plate is glued together with the anode side of the MEA.

3. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (1) to (2), characterized in that the adhesive was applied in the form of a sealing bead which is higher than the gas diffusion layer.

4. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with claim (3), characterized in that the volume of the applied and not yet cured sealing bead was dimensioned so as to precisely fill the gluing gap.

5. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of claims (1) to (4), characterized in that the adhesive material penetrates into the gas diffusion layer 0.2 mm to 1 mm.

6. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (1) through (5), characterized in that gluing has been carried out with a curable silicone or an epoxy resin.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

7. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (1) through (4), characterized in that the bipolar plate and/or the membrane has been pretreated with a bonding agent in the area of the sealing edge.

8. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (1) through (7), characterized in that the gas diffusion layer overlaps the sealing edge of the bipolar plate by 0.1 to 5 mm.

9. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with Claims (1) through (8), characterized in that the sealing edge and the surface of the gas distribution structure of the bipolar plate are located flush in one plane.

10. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (1) to (9), characterized in that for positioning the MEA with or without gas diffusion layers on the bipolar plate, a vacuum clamping table was used.

11. Assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (1) through (10), characterized in that anode and/or cathode gas conducts are provided, of which at least one which conducts the gas that is not to penetrate into the gas chamber of the assembly is sealed by gluing.

12. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA, characterized in that the free membrane edge of an MEA, which edge is not covered by a gas diffusion layer and is equipped or is not equipped with a catalyst, is being glued to the bipolar plate in a gas-tight manner.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



13. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with Claim (12), characterized in that the hydrogen side of the bipolar plate is glued to the hydrogen side of the MEA.

14. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (12) to (13), characterized in that the adhesive is applied in the form of a sealing bead which is higher than the gas diffusion layer.

15. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (12) to (14), characterized in that the volume of the applied and not yet cured sealing bed is dimensioned so as to precisely filling the gluing gap.

16. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (12) to (15), characterized in that the adhesive material penetrates into the gas diffusion layer by 0.2 mm to 1 mm.

17. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (12) through (16), characterized in the gluing process is performed with a curable silicone or an epoxy resin.

18. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (12) through (17), characterized in that the bipolar plate and/or the membrane are pretreated with a bonding agent in the area of the sealing edge.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

19. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (12) through (18), characterized in that the gas diffusion layer overlaps the sealing edge of the bipolar plate by 0.1 to 5 mm.

20. Method for producing a gas-proof assembly composed of a bipolar plate and an MEA according to any of claims (12) to (19), characterized in that the sealing edge and the surface of the gas distribution structure of the bipolar plate are located flush in one plane.

21. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of claims (12) to (20), characterized in that for positioning the MEA with or without gas diffusion layers on the bipolar plate, a vacuum clamping table is used.

22. Method for producing a gas-tight assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of claims (12) to (21), characterized in that anode and/or cathode gas conducts are provided, of which at least one which conducts the gas that is not to penetrate into the gas chamber of the assembly is sealed by gluing - cell -.

23. Application of the assembly composed of a bipolar plate and an MEA in accordance with any of Claims (1) through (11) in fuel cell stacks and/or piles of electrolysis cells.

24. Application according to claim (23), characterized in that several assemblies composed of a bipolar plate and an MEA according to any of Claims (1) through (11) are connected electrically in series by stacking.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

25. Application according to claim (23), characterized in that the gas chamber in the assemblies of bipolar plate and MEA, which gas chamber has not yet been sealed, is sealed by the method of any of claims (12) to (22) at the circumference and/or at the corresponding gas conduits, again at one side of the bipolar plate of an assembly with the corresponding side of an MEA of a second assembly.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 20 OCT 2000


PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts PCT/DE99/01890	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE99/01890	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 30/06/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 30/06/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK H01M4/00		
Anmelder MANHATTAN SCIENTIFICS, INC.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  
  
☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).  
  
 Diese Anlagen umfassen insgesamt 17 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☒ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☒ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  28/01/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  19.10.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Fitzpatrick, J  Tel. Nr. +49 89 2399 8570



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE99/01890

## I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

### Beschreibung, Seiten:

1-10                      eingegangen am                      14/08/2000    mit Schreiben vom                      14/08/2000

### Patentansprüche, Nr.:

1-15                      eingegangen am                      14/08/2000    mit Schreiben vom                      14/08/2000

### Zeichnungen, Blätter:

1/4-4/4                      eingegangen am                      14/08/2000    mit Schreiben vom                      14/08/2000

2. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,                      Seiten:
- ☐ Ansprüche,                      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,                      Blatt:

3. ☒ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)):

**siehe Beiblatt**

4. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**siehe Beiblatt**

## II. Priorität

1. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da folgende angeforderte Unterlagen nicht innerhalb der vorgeschriebenen Frist eingereicht wurden:
- ☐ Abschrift der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist.
  - ☐ Übersetzung der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist.
2. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da sich der Prioritätsanspruch als ungültig herausgestellt hat.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE99/01890

Für die Zwecke dieses Berichts gilt daher das obengenannte internationale Anmeldedatum als das maßgebliche Datum.

## 3. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**siehe Beiblatt**

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	

### 2. Unterlagen und Erklärungen

**siehe Beiblatt**

## VI. Bestimmte angeführte Unterlagen

### 1. Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)

und / oder

### 2. Nicht-schriftliche Offenbarungen (Regel 70.9)

**siehe Beiblatt**

## VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:

**siehe Beiblatt**

## VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

**siehe Beiblatt**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

### **Sektion I.3: Unannehmbarere Änderungen**

(i) Angaben, die zwar den Gegenstand der Erfindung betreffen (z.B. weitere Einzelheiten bezüglich der Vorteile der Erfindung oder der zu lösenden Aufgabe), aber keine Grundlage in den ursprünglichen Unterlagen haben, können nur im Antwortschreiben erwähnt, aber nicht in die Anmeldung aufgenommen werden. Diesbezüglich, obwohl die unter Sektion V.2 diskutierte Problematik eine Basis für die Anerkennung der Erfinderischen Tätigkeit darstellt, gehen die Bewertungen des Stand der Technik im dritten Absatz auf Seite 4 der Beschreibung weit über den Sachverhalt dieser Dokumente hinaus. Diese Bewertungen stoßen deswegen gegen Art.34(2)b) PCT.

Der Gegenstand des Satzes auf Seite 6, Zeilen 27-29 stellt einen Versuch dar, ein anderen Spalt zu definieren. Diesbezüglich der Satz auf Seite 6, Zeilen 16-18 der ursprünglichen Beschreibung bezieht sich auf dem gesamten Spalt zwischen der Oberfläche der Gasdiffusionsschicht und dem Dichtrand und nicht auf einem kleineren Spalt zwischen dem äußeren Rand der Gasdiffusionsschicht und dem **schließlichen verfestigten Kleber**. Dies stößt deswegen auch gegen Art.34(2)b) PCT.

### **Sektion I.4: Annehmbarere Änderungen**

(i) Die Basis der neu eingeführten Merkmale des vorliegenden Anspruchs 1 ist von den Figuren 2 und 4 oder 5 in Zusammenhang mit den Offenbarungen auf Seite 6, Zeilen 16-25 und Seite 8, Zeilen 17-18 der ursprünglichen Anmeldung zu entnehmen, während der Gegenstand des Anspruchs 7 eine Basis in den ursprünglich eingereichten Figuren 3 und 5 hat.

(ii) Die Einführung des Begriffs "Kleberand" d.h Merkmal "3a" (siehe insbesondere Seite 6, Zeilen 6-9) wie in den neuen Figuren 1 und 2 dargestellt wird, kann als eine implizite Offenbarung der ursprünglichen Unterlagen angenommen werden. Diesbezüglich hätte das Bezugszeichen "3a" auf Zeile 16 der ursprünglichen Seite 6 von den Figuren 2-5 das Bezugszeichen "3b" sein sollen.

### **Sektion 2.3: Priorität**

Bezüglich dem Gegenstand der vorliegenden Ansprüche 1-15 wurde die Priorität vom 30.06.98 rechtmäßig beansprucht.

### **Sektion V.2: Zitierungen und Erklärungen**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(i) Auf der Basis der englischen Abstrakte des internationalen Recherchenberichts offenbart Dokument JP 09 289 029 (D1a), das als nächste Stand der Technik betrachtet werden kann, einen SPE-Membran-Brennstoffzellenstack wobei Klebstoff oder vorgeformte klebrige pflasterartige Rahmen 18 eingesetzt werden um die Gasräume zu verdichten, von dem sich der Gegenstand des Anspruchs 1 dadurch unterscheidet, daß die Gasverteilerplatten 10 nicht explizit als Bipolarplatten gekennzeichnet sind. Es ist dem Fachmann jedoch allgemein bekannt, daß die Zellen des Stacks elektrisch in Serie geschaltet werden. Vor allem auf Grund der Konstruktion mit Endplatten 27 in Figur 9 des Dokuments D1 läßt keinen Zweifel mehr offen, daß die Platten 10 bipolar sein müssen. Die MEA-Einheit 16 ist in Fig.9 des Dokuments D1 dargestellt. Es ist weiter von Fig.3 und 9 des Dokuments D1 auch zu erkennen, daß die freie Membranränder jeder MEA mit den Platten 10 beidseits verklebt sind.

Trotzdem besteht einen zusätzlichen und dieses Mal echten Unterschied, nämlich ist es vom Dokument D1 **nicht** klar zu entnehmen, daß der im vorliegenden Anspruch 1 geschilderte Volumenbereich bis zu seinen Begrenzungsflächen **spaltfrei** mit einem verfestigten Klebemittel ausgefüllt ist, obwohl der in den Figuren 1 und 3 des Dokument D1 geschilderte gleiche Volumenbereich (d.h. mit den gleichen ober-, innen- und unterseitigen Randseiten) an diese Ränder im Betriebsfertigen Zustand an Anfang des Betriebslebens als **Gasdicht** betrachtet werden mußte.

Die Gegenstände der vorliegenden Ansprüche 1-15 sind deshalb neu gegenüber Dokument D1.

Im Gegensatz zur vorliegenden Anmeldung hat weder Dokument D1 noch die anderen Dokumente des internationalen Recherchenberichts die Problematik eines Spaltes zwischen dem Außenrand der Gasdiffusionsschicht und der Dichtung nicht erkannt d.h. Im Bereich dieses Spalts liegt die Membran weder an die Dichtung noch an der Gasdiffusionsschicht an und ist somit nicht gestützt. Im Lauf des Betriebsleben einer Zelle und Aufgrund der erheblichen Dehnungen und Schrumpfungen der Membran sind solche Spalte häufig der Ausgangspunkt von Rissen in der Membran, die eine Zerstörung der Zelle verursachen könnte. Dies wird gemäß dem obengenannten neuen Merkmal des vorliegenden Anspruchs 1 verhindert, da ohne Spalte ist die Membran vollständig gestützt. Gleichzeitig wird keine zusätzlichen Dichtungselemente wie die im Dokument JP 07 065 847 (D3) (siehe z.B. die Figuren 1 und 2) benötigt und somit ist

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



ein einfaches, kostengünstiges Verfahren zur Herstellung eines derartigen Verbundes erzielt. Somit sind die Erfordernisse des Artikels 33(2)-(4) PCT erfüllt.

**Sektion VI: Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)**

Anmelde Nr. Patent Nr.	Veröffentlichungsdatum (Tag/Monat/Jahr)	Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (zu Recht beansprucht) (Tag/Monat/Jahr)
EP 0 918 362	26.05.99	18.11.98	21.11.97
GB 2 323 700	30.09.98	27.03.98	29.03.97
WO 98/33225	30.07.98	29.01.98	29.01.97
DE 198 23 880	10.12.98	28.05.98	03.06.97

**Sektion VII: Bestimmte Mängel**

Der Anspruch 1 ist zwar in der zweiteiligen Form abgefaßt; das Merkmal, daß der darin definierten Volumenbereich "gasdicht" ist, ist aber unrichtigerweise im kennzeichnenden Teil aufgeführt (Regel 6.3 b) PCT), da es im Dokument D1 in Verbindung mit den im Oberbegriff genannten Merkmalen offenbart wurde (siehe Sektion V.2 oben).

**Sektion VIII: Bestimmte Bemerkung unter Artikel 6 PCT**

Das Bezugszeichen "6" auf der vierten Zeile des Anspruchs 6 ist nicht korrekt, da dieses den Wasserstoffraum darstellt (siehe z.B. Seite 6, Zeile 12-13 oder Seite 7, Zeile 25 der ursprünglichen Anmeldung).

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

PCT/DE 99/01890  
Manhattan Scientifics, Inc.  
New York, USA

**GASDICHTER VERBUND AUS BIPOLARPLATTE  
UND MEMBRAN-ELEKTRODEN-BAUGRUPPE VON  
POLYMERELEKTROLYTMEMBRAN-BRENNSTOFFZELLEN**

5

Die Erfindung betrifft einen gasdichten Verbund aus Bipolarplatte und Membran-Elektroden-Einheit von Polymerelektrolytmembran(PEM)-Brennstoffzellen, ein Verfahren zu seiner Herstellung und die Anwendung des Verbunds in einem reihengeschalteten Brennstoffzellenstack.

10

Eine PEM-Brennstoffzelle besteht aus zwei Stromableiterplatten, zwei porösen, eventuell katalysierten Gasdiffusionsschichten und einer katalysierten oder nicht katalysierten Ionenaustauschermembran, die zwischen diesen Schichten angeordnet ist. Die Fachsprache hinsichtlich der Verbundkomponenten ist bisher noch nicht einheitlich, es werden gelegentlich die Gasdiffusionsschichten und gelegentlich auf der Membran aufgebrachte Katalysatorschichten auch als Elektroden bezeichnet. An den Stromableiterplatten befinden sich typischerweise Einrichtungen zur Zuführung und Verteilung der Reaktanden, sogenannte Gasverteilungsstrukturen. Da die elektrische Spannung einer einzelnen Zelle für praktische Anwendungen viel zu niedrig ist, müssen eine Mehrzahl solcher Zellen in Reihe

15

GEÄNDERTES BLATT

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

geschaltet werden. Bei dem sich daraus ergebenden Brennstoffzellenstapel bzw. -stack werden die aufeinandertreffenden Stromableiterplatten als Bipolarplatten bezeichnet. Eine Bipolarplatte steht mit einer ihrer Oberflächen in elektrischem Kontakt mit der Anode einer Zelle des Stapels, während die gegenüberliegende Oberfläche mit der Kathode der benachbarten Zelle kontaktiert ist. Die Funktion der Bipolarplatten liegt zum einen im Durchleiten des Stroms durch den Stack, zum anderen im Trennen der Reaktionsgase. Auch weisen sie meistens Gasverteilungsstrukturen z. B. ein Kanalsystem zur besseren Verteilung der Reaktionsgase im Anoden- und Kathodenraum auf.

Durch Zuführung des typischen Reaktionsgases Wasserstoff an die Anodenseite der Brennstoffzelle werden in der Katalysatorschicht, die anodenseitig mit der Ionenaustauschermembran direkt in Berührung steht, Kationen gebildet und gleichzeitig Elektronen an die Elektronen leitenden anodenseitigen Schichten abgegeben. Als Oxidationsmittel wird typischerweise Sauerstoff (oder Luft) der Kathodenseite der Zelle zugeführt. Durch Aufnahme der durch die Ionenaustauschermembran diffundierten Wasserstoffionen und der durch einen äußeren Stromkreis von der Anode zur Kathode geführten Elektronen wird das Reaktionsgas Sauerstoff reduziert. Diese Reaktion läuft ebenfalls in einer Katalysatorschicht ab, die die Membran kathodenseitig kontaktiert. In den bevorzugten Anwendungsfällen ist die Konzentration des Sauerstoffs in der Luft ausreichend. Als Reaktionsprodukt entsteht Wasser. Die Reaktionsenthalpie wird in Form von elektrischer Energie und Abwärme frei. Die Membran und die Gasdiffusionsschichten oder Elektroden, einschließlich der jeweiligen Katalysatorschichten, werden zusammen als Membran-Elektroden-Baugruppe (im folgenden MEA - Membrane Electrode Assembly) bezeichnet. Ob zu den "Elektroden" Anteile der Gasdiffusionsschicht hinzuzurechnen sind oder ob nur der Katalysator die Elektroden bildet, ist, wie gesagt, in der Literatur nicht einheitlich geregelt. Im folgenden wird bei einer für das Verständnis notwendigen Unterscheidung gesondert darauf hingewiesen.

Ein wesentliches Problem bei der Konstruktion von Brennstoffzellenstacks ist die dauerhafte Abdichtung des Anodenraums. Aufgrund der hohen Reaktionsfreudigkeit von Wasserstoff ist dies neben guter Energieausnutzung auch aus Sicherheitsgründen notwendig. Wird Luft oder Sauerstoff mit wesentlichem Überdruck verwendet, so muß auch der Kathodenraum abgedichtet werden.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

Viele Dichtungssystemen benötigen am Dichtrand erheblichen Anpreßdruck, um die notwendige Dichtwirkung zu erreichen. Dies hat zur Folge, daß die Spannplatten größer dimensioniert werden müssen und somit den gesamten Stack schwerer machen, was nachteilig für die mobile Anwendung ist. Bei Verwendung von Klemmelementen am Rahmen entsteht zusätzliches Gewicht durch relativ dickwandige Metallteile. Die Abstimmung zwischen der Dicke der Elektroden und der Bipolarplatten und der Dicke der Dichtung ist äußerst schwierig, da beide, Elektroden und Dichtung, geeigneten Anpreßdruck benötigen, aber unterschiedliche Elastizitäten aufweisen. Die tolerierbaren Dickenabweichungen sind sehr klein. Diese Anforderung führt zu aufwendigen Herstellungsverfahren, die sehr kostenintensiv sind. Aufgrund der unterschiedlichen, verwendeten Materialien bei Bipolarplatten und Dichtung besteht auch die Gefahr, daß es bei Inbetriebnahme zu Undichtigkeiten kommt, da sich bei Erwärmung die verschiedenen Materialien unterschiedlich ausdehnen. Bei Verwendung von Elastomerdichtungen werden häufig dünne Membranen durch die Längenänderung des Elastomers (z. B. Silikon) beim Zusammenspannen zerrissen.

Ein Verfahren, die Gasräume von PEM-Brennstoffzellen abzudichten, besteht in der Fertigung von Dichtungen aus Elastomermaterialien und dem Anordnen dieser Dichtungen zwischen der Polymerelektrolytmembran und den Bipolarplatten, die aus gasdichtem Graphitmaterialien hergestellt sind. Dabei wird die Dichtung in, auf komplizierte Art und Weise hergestellte, Schlitze eingelegt, die eigens dafür in einem Kohlefaserpapier, das als Gasdiffusionsschicht dient, vorgesehen sind. Eine solche Anwendung findet sich beispielsweise in der US-PS 5,284,718.

Die Dichtung kann auch aus einer in der Bipolarplatte integrierten Erhebung, die durch einen Prägevorgang hergestellt ist, gebildet werden. Die Bipolarplatten müssen dann aber aus einem elastischem, plastisch verformbaren und gasdichten Material, z. B. aus Graphitfolien hergestellt sein. Auch hier benötigt die Dichtung erheblichen Druck für die Ausbildung der Dichtwirkung, der von den Spannplatten ausgeübt werden muß. Ein derartiges Verfahren zeigt z. B. DE-OS 195 42 475 A1.

Ein weiteres Abdichtungsverfahren stellt DE-PS 44 42 285 C1 vor, bei dem die negative Polplatte, die Membran, die positive Polplatte und zwei Dichtungen am Rand durch ein Rahmenelement gasdicht und elektrisch isolierend miteinander verklemmt werden. Das aus Metall bestehende Rahmenelement kann Teil einer

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



Polplatte sein und besitzt einen U-Profil-Querschnitt. Durch Aufweitung dieses U - Profils bei der Montage entsteht der Anpreßdruck.

Auch ist es möglich, wie EP-PS 0 690 519 A1 zeigt, eine Einheit aus einer Flächendichtung und der Ionenaustauschermembran herzustellen. Die aus porösem Polytetrafluorethylen bestehende Dichtung ist auf beiden Seiten der Membran angebracht und umgibt den mit Katalysator beschichteten Teil der Membran als eine Art Rahmen.

Aus der JP 09-289029 sind geklebte Zellen und schließlich auch geklebte Stapel bekannt, die einzeln hergestellt, gestapelt und wiederum zu einem Stapel zusammengeklebt sind. Die Figuren dieser Druckschrift zeigen die Verklebung mit einem in Fig. 4 in der Draufsicht dargestellten Viereckrahmen 18, also einem vorgeformten Klebeeinsatz. Einen vergleichbare Aufbau zeigt auch die WO 94/25995. Dort ist ein Rahmenelement vorhanden, das unter Verwendung eines Silikon-Dichtungsmittels eingeklebt ist. Solche vorgefertigten Rahmen füllen allein schon aufgrund von Herstellungstoleranzen, aber auch zweckbestimmt zum erleichterten Einsetzen, den entsprechenden Dichtspalt nicht vollständig aus, denn die Dichtung muß größer als die Gasdiffusionsschicht ausgeschnitten werden, und es ergibt sich das Problem der Bildung eines Spalts insbesondere außenseitig von der stromleitenden Gasdiffusionsschicht zwischen dieser und dem Kleberahmen. Im Bereich dieses Spalts liegt die Membran weder an der Dichtung noch an der Gasdiffusionsschicht an und ist somit ungestützt. Aufgrund der erheblichen Dehnungen und Schrumpfungen der Membran in Abhängigkeit von Umweltfaktoren, insbesondere von der Feuchtigkeit, sind diese Spalte häufig der Ausgangspunkt von Rissen in der Membran, die eine Zerstörung der Zelle darstellen. Eine erhöhte Gefahr von Reißbildung in der Membran tritt besonders bei stark quellenden und sehr dünnen Membranen wie z. B. bei Membranen aus sulfoniertem Polyetherketon auf.

Durch die Erfindung soll die Bildung eines solchen Spalts sicher verhindert werden. Dies erfolgt dadurch, daß der außen um die Gasdiffusionsschicht umlaufende Volumenbereich bis zu seinen Begrenzungsflächen spaltfrei und gasdicht mit einem dort verfestigten Klebemittel ausgefüllt ist. Gemäß einer bevorzugten Ausführung dringt das Klebemittel sogar noch ein kleines Stück in die Diffusionsschicht ein, und gemäß einer weiteren sehr wichtigen besonderen Ausführung sind solche spaltfreien Klebedichtungen nicht nur am Außenumfang der Gasdiffusions-

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

schicht zwischen der Bipolarplatte und der Membran, sondern auch zwischen diesen Bauteilen am Ort von Gasdurchführungen ausgebildet.

Weitere bevorzugte Weiterbildungen der Erfindung finden sich in den jeweiligen Unteransprüchen.

5 Die Erfindung wird im folgenden unter Bezugnahme auf die Zeichnung anhand der Darstellung eines Ausführungsbeispiels und von Zwischenstufen seines Herstellungsverfahrens näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 in Draufsicht eine Bipolarplatte mit darauf angeordneter, durchsichtig dargestellten Gasdiffusionsschicht;

10 Fig. 2 einen Querschnitt durch die Anodenseite eines erfindungsgemäßen Verbunds in dessen Randbereich in einer Zwischenstufe des Herstellungsverfahrens;

Fig. 3 einen Querschnitt entsprechend Fig. 2 in einem Gasdurchführungsbereich des Verbunds;

15 Fig. 4 einen Querschnitt durch den hinsichtlich seiner Schichtung gesamten Verbund eines Zellenstacks in dessen Randbereich, wobei in der oberen Hälfte eine Zwischenstufe des Herstellungsverfahrens und in der unteren Hälfte der Endzustand dargestellt sind;

20 Fig. 5 einen Querschnitt entsprechend Fig. 4 in einem Gasdurchführungsbereich des Verbunds.

Fig. 1 zeigt eine Bipolarplatte 1 mit einer Seite 1a und einer Seite 1b, und mit Gasdurchführungsbohrungen 2a für das Reduktionsmittel Wasserstoff und Gasdurchführungsbohrungen 2b für das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft, mit einer Gasverteilungsstruktur, z. B. einer Kanalstruktur 3, und mit einem umlaufendem, nicht strukturierten Dichtrand, dessen Breite zwischen 0,1 mm und 10 mm, bevorzugt zwischen 1 mm und 5 mm, besonders bevorzugt zwischen 2 mm und 3 mm liegt. Zweckmäßigerweise, aber nicht notwendig, liegen die Erhebungen der Kanalstruktur 3 auf derselben Ebene wie der Dichtrand. Stromleitende und gasdurchlässige Gasdiffusionsschichten 4 mit typischer Dicke zwischen 0,1 mm und 0,5 mm sind auf der Bipolarplatte positioniert und mit einer Haltevorrichtung fixiert, und zwar eine anodenseitige Gasdiffusionsschicht 4a des Wasserstoffraums und eine kathodenseitige Gasdiffusionsschicht 4b des Sauerstoffraums (Fig. 4). Besonders vorteilhaft kann deren Positionierung mit Hilfe von Stiften in den Gasdurch-

25

30

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

führungen 2a und 2b erfolgen. Die Gasdiffusionsschichten müssen dazu an den den Durchführungen in der Bipolarplatte entsprechenden Stellen Aussparungen aufweisen. Die Gasdiffusionsschicht 4a ist etwas größer als der mit der Kanalstruktur 3 versehene Bereich der Bipolarplatte. Die Überlappung 5 zwischen der Gasdiffusionsschicht 4 und der Kanalstruktur 3 liegt zwischen 0,1 mm und 5 mm, bevorzugt zwischen 0,3 mm und 0,8 mm und verringert die Breite des Dichtrands auf einen Kleberand 3a, der der Randbereich der Bipolarplatte 1 ist, der außerhalb des von der Gasdiffusionsschicht überdeckten Bereichs ist und einen ringförmigen um die Gasdiffusionsschicht liegenden Volumenbereich begrenzt. Die Kanalstruktur 3 mit der Gasdiffusionsschicht 4a bilden einen Wasserstoffraum 6.

Zunächst soll die Abdichtung des Wasserstoffraumes 6 dargestellt werden, die bevorzugt durchgeführt wird. Bei der Herstellung eines gasdichten Verbundes der Bipolarplatte und der Membran-Elektroden-Einheit muß unterschieden werden, ob im Aufbau der PEM-Brennstoffzelle eine komplette MEA verwendet wird, d. h. eine Membran mit zwei Katalysatorschichten und mit mindestens der Anoden-Gasdiffusionsschicht, oder ob es sich um katalysierte Membranen mit aufgelegter Anoden-Gasdiffusionsschicht handelt. Im folgenden wird zunächst die Vorgehensweise bei Auswahl einer katalysierten Membranen mit nur aufgelegter Anoden-Gasdiffusionsschicht beschrieben. Die dabei gemachten Angaben zur Breite des Dichtrandes, zur Dicke der Gasdiffusionsschicht und zur Überlappung zwischen Gasdiffusionsschicht und Bipolarplatte gelten bevorzugt für alle noch darzustellenden Klebverfahren.

Zur Herstellung des Zellenverbunds wird, nach Auswahl eines geeigneten Klebers zur Abdichtung des Wasserstoffraums 6, wie in Fig. 2 dargestellt eine Kleberaupe 7, die höher ist als die Gasdiffusionsschicht 4a des Wasserstoffraums, auf die Seite 1a der Bipolarplatte aufgetragen, die mit der anodenseitigen Gasdiffusionsschicht 4a in Kontakt steht. Das Volumen des aufgetragenen Klebers wird so bemessen, daß der Spalt zwischen der seitlichen Oberfläche der Gasdiffusionsschicht 4a und dem schließlichen verfestigten Kleber vollständig gefüllt wird. Die Kleberaupe 7 wird also mit geeigneten Dosiervorrichtungen dergestalt aufgebracht, daß sie die Oberfläche der Gasdiffusionsschicht 4a überragt, und wird am Kleberand so positioniert, daß sie die Gasdiffusionsschicht gerade eben berührt oder knapp vor dieser endet.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

Der Verbund umfaßt weiterhin eine katalysierte oder nicht katalysierte Membran 8. Durch Auflegen der z. B. katalysierten Membran 8 wird nun die Kleberaupe 7 so deformiert, daß sie den gesamten Spalt zwischen Bipolarplatte und Membranunterseite füllt und der Kleber zumindest bis an die Stirnflächen der Gasdiffusionsschicht reicht und bevorzugt sogar über Distanzen von  $< 1$  mm in die Gasdiffusionsschicht 4a eindringt. Die so aufgelegte Membran 8 kann zunächst eben auf der Gasdiffusionsschicht 4a liegen oder im Bereich der Kleberaupe 7 auch leicht erhöht sein.

Um die dünne, katalysierte Membran auf die Bipolarplatte mit Gasdiffusionsschicht und Kleberaupe eben aufzulegen, bedient man sich zweckmäßigerweise einer Hilfskonstruktion, nämlich eines beweglichen Vakuumspanntisches. Dieser kann ähnlich einer Bipolarplatte aus einem Kanalsystem bestehen, das durch ein poröses Kohlfaserpapier abgedeckt ist. Durch Erzeugung eines Unterdrucks in diesem Kanalsystem kann eine Membran eben aufgespannt und zusammen mit dem Vakuumspanntisch auf die Bipolarplatte mit Gasdiffusionsschicht und Kleberaupe aufgesetzt werden. Bevorzugt enthält auch die Membran und evtl. der Vakuumspanntisch an denselben Positionen wie die Bipolarplatte Bohrungen, die später zur Gasdurchführung durch die einzelnen Zellen eines Stacks dienen.

Anschließend muß der Kleber je nach Art seiner Zusammensetzung unter den entsprechenden Bedingungen, beispielsweise bei leichter Temperaturerhöhung oder bei Raumtemperatur, ausgehärtet werden.

Nun ist es möglich, den so hergestellten Verbund aus Bipolarplatte und Membran auf seine Dichtigkeit zu prüfen und bei Bedarf auch eine Funktionsprüfung dieser einzelnen Brennstoffzelle vorzunehmen. Die Funktionsprüfung kann dadurch erfolgen, daß der Verbund mit einer geeigneten Luftführungsstruktur aus Graphit zusammengespannt wird und die somit vollständige Einzelzelle zumindest mit Luft nahe dem Umgebungsdruck betrieben werden kann.

Falls eine Membran, auf der die Gasdiffusionsschichten haften, verwendet werden soll, existiert ebenfalls eine Möglichkeit der Abdichtung des Wasserstoffgasraums zwischen Bipolarplatte und MEA. Die MEA muß dazu einen freien, d. h. nicht von der Gasdiffusionsschicht bedeckten Rand aufweisen. Die Kleberaupe wird dann eventuell nicht auf die Bipolarplatte, sondern bevorzugt direkt auf die MEA, die vorteilhaft auf einem geeigneten Vakuumspanntisch aufgespannt ist, aufgetra-

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



gen. Die so vorbereitete MEA kann dann zusammen mit dem Vakuumspanntisch auf die Bipolarplatte aufgesetzt werden.

Wie in Fig. 3 dargestellt ist, können auch die Gasdurchführungen wie hier die Gasdurchführung 2b für das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft durch den Teil der Bipolarplatte 1, dessen Seite 1a mit der Anode in Kontakt steht, in der für die beiden Arten von MEA bereits beschriebenen Weise gegen den Wasserstoffraum 6 gedichtet werden.

Um aus mehreren erfindungsgemäßen Einheiten aus Bipolarplatte und MEA einen Brennstoffzellenstack herzustellen, der auch mit Sauerstoff oder Luft unter Überdruck betrieben werden kann, können diese Einheiten miteinander luft- und wasserstoffdicht analog dem obigen Verfahren folgendermaßen (vgl. Fig. 4 und Fig. 5) verklebt werden:

Zunächst wird ein Verbund aus Bipolarplatte und MEA einschließlich kathoden-seitiger Gasdiffusionsschicht 4b, die am Rand und um die Wasserstoffdurchführung etwas Membranfläche für eine Kleberaupe freiläßt, bereitgestellt. Die Kleberaupe 7 wird in der oben beschriebenen Weise am Umfang der Membran 8 (Fig. 4) und um die Wasserstoffdurchführungen 2a (Fig. 5) aufgebracht. Eine weitere Einheit aus Bipolarplatte und MEA wird mit dem Teil der Bipolarplatte 1, dessen Seite 1b mit der Kathoden in Kontakt steht, auf die Kleberaupe 7 aufgesetzt. Der Kleber wird anschließend unter geeigneten Bedingungen ausgehärtet. Die Kleberaupe 7 am Umfang der Membran 8 dichtet die evtl. unter Überdruck stehende Luft gegen den Außenraum ab, während die Kleberaupe 7 um die Wasserstoffdurchführung 2a verhindert, daß Wasserstoff in den Kathodenraum eindringt.

Bei Betrieb mit Luft nahe dem Umgebungsdruck kann auf die in Fig. 4 dargestellte Abdichtung am äußeren Umfang des Luftraumes verzichtet werden.

Falls Durchführungsbohrungen für Kühlmedien oder Spannelemente vorgesehen sind, können diese gegen Anoden- und Kathodenraum nach Maßgabe von Fig. 3 und zugleich Fig. 5 abgedichtet werden.

Der gasdichte Verbund aus Membran-Elektroden-Baugruppe und Bipolarplatte kann also durch ein technisch unkompliziertes Klebverfahren erstellt werden, wobei als Klebemittel ein oder mehrere aushärtbare Polymere (Klebstoffe) verwendet werden. Um auf einfache Weise einen gasdichten Verbund aus Bipolarplatte und Membran herstellen zu können, muß das Klebemittel auf der Bipolarplatte und auf

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

der Membran, die evtl. mit einem Katalysator versehen ist, haften. Die Wirksamkeit der Edelmetallkatalysatoren und die Leitfähigkeit der Membran darf weder während des Aushärtungsvorgangs noch im ausgehärtetem Zustand durch flüchtige Stoffe beeinträchtigt werden.

5           Es existieren handelsübliche Klebstoffe, die diese Anforderungen erfüllen. Bei Verwendung von Metallbipolarplatten eignen sich bevorzugt Silikone als dichtendes Klebemittel. Sie haften gut auf nahezu allen Metallen und auf den gängigen perfluorierten oder nichtfluorierten, evtl. auch mit Katalysator versehenen Membrantypen. Werden Graphitbipolarplatten oder Composites aus Graphit und Polymeren eingesetzt, so kann entweder Epoxidharz mittlerer Viskosität oder wiederum  
10           Silikon als Klebedichtung verwendet werden. Im letzteren Fall ist allerdings auf der Bipolarplatte eine Haftvermittlungsschicht aus einem dünnen Epoxidharzfilm auf der möglichst aufgerauhten Oberfläche der Bipolarplatte anzubringen. Dieser Epoxidharzfilm kann mittels Siebdruck, Sprühverfahren oder Pinseln aufgebracht  
15           werden. Ist ein besonders dünner Film erwünscht, so kann z. B. das zweikomponentige Epoxidharzprodukt Körapox 439 (Kömmerling GmbH) zuvor mit niederen Alkoholen z. B. Ethanol verdünnt werden.

          Für alle Arten von Bipolarplatten eignen sich zur Verklebung besonders die Produkte Elastosil E 41 und E 43 (Wacker Chemie AG). Aufgrund von massiven  
20           Vergiftungserscheinungen an den aktiven Zentren von Katalysator und Membran ist das zweikomponentige Epoxidharz Stykast W19 (Grace N.V., Belgien) nicht geeignet. Die Viskosität des Klebers liegt zwischen 10.000 mPas und 500.000 mPas, bevorzugt zwischen 60.000 mPas und 350.000 mPas. Eine leicht thixotrope Konsistenz kann von Vorteil sein.

25           Die Vorteile des erfindungsgemäßen Klebverfahrens liegen in der Vermeidung von Spalten zwischen Dichtung und Gasdiffusionsschichten. Weiterhin bedarf es keines großen Anpreßdrucks, da dieser durch die Adhäsionskräfte der Klebung ersetzt wird. Weder Dichtung noch Elektroden müssen mit geringen Maßtoleranzen gefertigt, auch der Querschnitt der Gaszuführungen kann beliebig gewählt werden.  
30           Dichtetests und zumindest Funktionstest mit Luft unter Umgebungsdruck sind für die Einzelzellen möglich. Es entsteht nahezu kein zusätzliches Gewicht durch die Klebedichtung. Eine kostengünstige, industrielle Fertigung ist somit möglich.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**BEZUGSZEICHENLISTE**

- (1) Bipolarplatte
- 5 (1a) Seite der Bipolarplatte, die mit der Anode in Berührung steht
- (1b) Seite der Bipolarplatte, die mit der Kathode in Berührung steht
- (2) Gasdurchführungsbohrungen
- (2a) Gasdurchführung für das Reduktionsmittel Wasserstoff
- (2b) Gasdurchführung für das Oxidationsmittel Sauerstoff oder Luft
- 10 (3) Gasverteilungsstruktur z. B. Kanalstruktur
- (3a) Kleberand
- (3b) Gasverteilungsstruktur für Sauerstoff
- (4) Gasdiffusionsschicht
- (4a) Gasdiffusionsschicht des Wasserstoffraums
- 15 (4b) Gasdiffusionsschicht des Sauerstoffraums
- (5) Überlappung zwischen Gasdiffusionsschicht und Bipolarplatte
- (6) Wasserstoffraum
- (7) Kleberaupe
- (8) Membran

20

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**PATENTANSPRÜCHE**

- 5 1. Verbund aus einer Membran-Elektroden-Baugruppe "MEA" (8, 4a, 4b) und einer Bipolarplatte (1) einer Brennstoffzelle als Bauelement eines Brennstoffzellenstapels, wobei die MEA eine Polymerelektrolytmembran (8) und auf dieser mit Ausnahme des Membranrands im Verbund aufliegend eine Gasdiffusionsschicht (4a, 4b) umfaßt, an deren der Membran gegenüberliegenden Seite die Bipolarplatte (1) anliegt, die unter Bildung eines umlaufenden, ober-, innen- und unterseitig durch die Bipolarplatte (1), die Gasdiffusionsschicht (4a, 4b) und die Membran (8) begrenzten randseitigen Volumenbereichs über den Rand der Gasdiffusionsschicht übersteht, dadurch gekennzeichnet, daß der umlaufende Volumenbereich bis zu seinen Begrenzungsflächen spaltfrei und gasdicht mit einem verfestigten Klebemittel (7) ausgefüllt ist.
- 10 2. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Wasserstoffseite der Bipolarplatte (1) mit der Anodenseite der MEA (8, 4a, 4b) verklebt ist.
- 15 3. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Klebemittel (7) 0,2 mm bis 1 mm in die Gasdiffusionsschicht (4a) eingedrungen ist.
- 20 4. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß das verfestigte Klebemittel (7) ein ausgehärtetes Silikon oder ein Epoxidharz ist.
- 25 5. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Bipolarplatte (1) und/oder die Membran (8) im Bereich des Klebemittels mit einem Haftvermittler vorbehandelt ist.
- 30 6. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der mit dem verfestigten Klebemittel (7) verbun-

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



dene Randbereich der Bipolarplatte (1) und die Oberfläche von deren Gasverteilungsstruktur (6) in einer Ebene liegen.

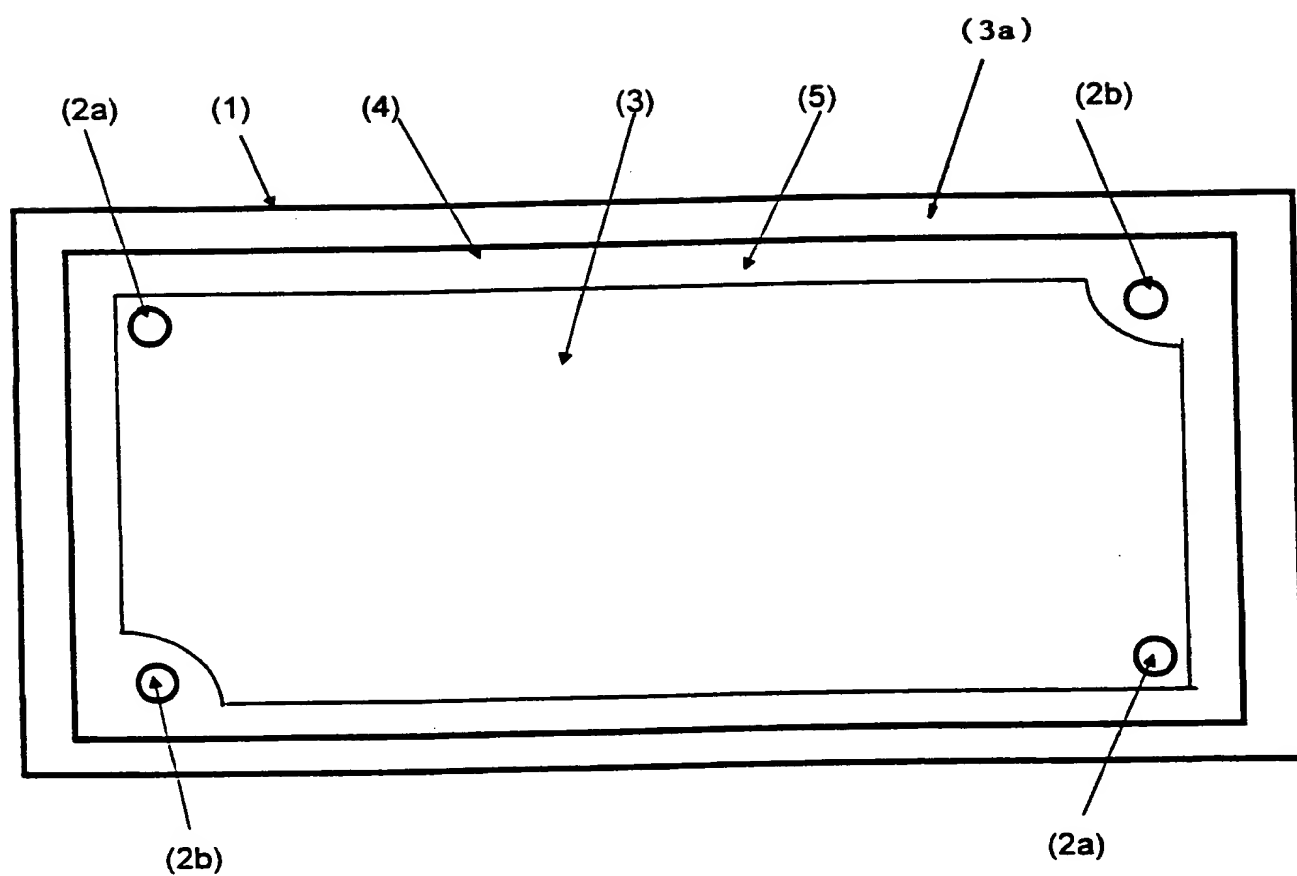
- 5 7. Verbund aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich von Anoden- und/oder Kathodengasdurchführungen auch ober-, außen- und unterseitig durch die Bipolarplatte (1), die Gasdiffusionsschicht (4a, 4b) und die Membran (8) begrenzte Volumenbereiche, die die Gasdurchführungen (2a, 2b) umgeben, spaltfrei und gasdicht mit verfestigtem Klebemittel ausgefüllt sind.
- 10 8. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes aus wenigstens einer Bipolarplatte und wenigstens einer Membran-Elektroden-Baugruppe "MEA" nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß man zur dichten Ausfüllung eines umlaufenden, ober-, innen- und unterseitig durch die 15 Bipolarplatte (1), eine Gasdiffusionsschicht (4a, 4b) und die Membran (8) begrenzten randseitigen Volumenbereichs zunächst auf den Rand der Membran oder der Bipolarplatte fließfähiges Klebemittel in Form einer Dichtraupe aufträgt, die höher ist als die Gasdiffusionsschicht und deren Volumen man so bemißt, daß sie den genannten Volumenbereich vollständig füllt, und man das 20 Klebemittel dann durch Zusammenfügen des Verbunds aus der Membran, der Gasdiffusionsschicht und der Bipolarplatte in die Form des Volumenbereichs bringt und so aushärten läßt.
- 25 9. Verfahren nach Anspruch 8 für eine Reaktion zwischen Wasserstoff und Sauerstoff, dadurch gekennzeichnet, daß man die Wasserstoffseite der Bipolarplatte bzw. der MEA verklebt, indem man das Klebemittel auf die Wasserstoffseite der Bipolarplatte bzw. der MEA aufträgt.
- 30 10. Verfahren nach Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, daß man das Klebemittel vor dem Verfestigen 0,2 mm bis 1 mm in die Gasdiffusionsschicht eindringen läßt.
11. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

man die Klebung mit einem aushärtbaren Silikon oder einem Epoxidharz durchführt.

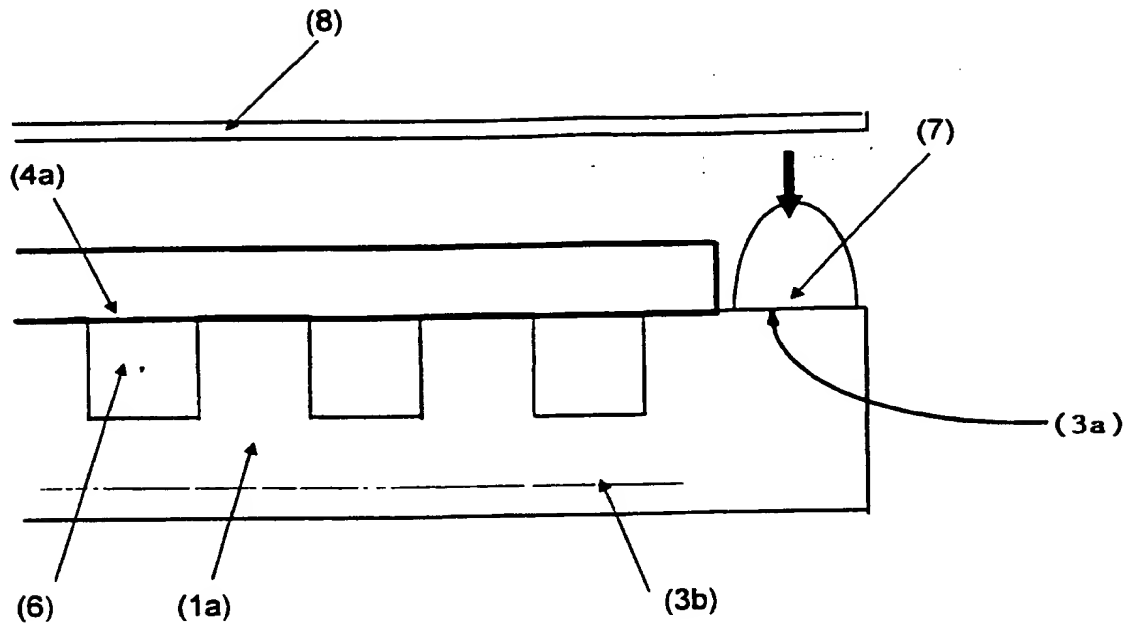
- 5 12. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß man die Bipolarplatte und/oder die Membran im Bereich des Klebemittels mit einem Haftvermittler vorbehandelt.
- 10 13. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Positionierung der MEA mit oder ohne Gasdiffusionsschichten auf der Bipolarplatte ein Vakuumspanntisch verwendet.
- 15 14. Verfahren zur Herstellung eines gasdichten Verbundes nach Anspruch 7, der Anoden- und/oder Kathodengasdurchführungen umfaßt, nach einem der Ansprüche 8 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß man mindestens eine der Gasdurchführungen (2a, 2b), welche das Gas führt, das nicht in den Gasraum des Verbundes eindringen soll, durch Klebung mit dem Klebemittel analog dem randseitigen Volumenbereich abdichtet.
- 20 15. Anwendung des Verbundes aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche 1 bis 7 in Brennstoffzellenstacks und/oder Stacks aus Elektrolysezellen, indem mehrere Verbunde aus Bipolarplatte und MEA nach einem der Ansprüche 1 bis 7 durch Stapelung elektrisch in Serie geschaltet sind.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

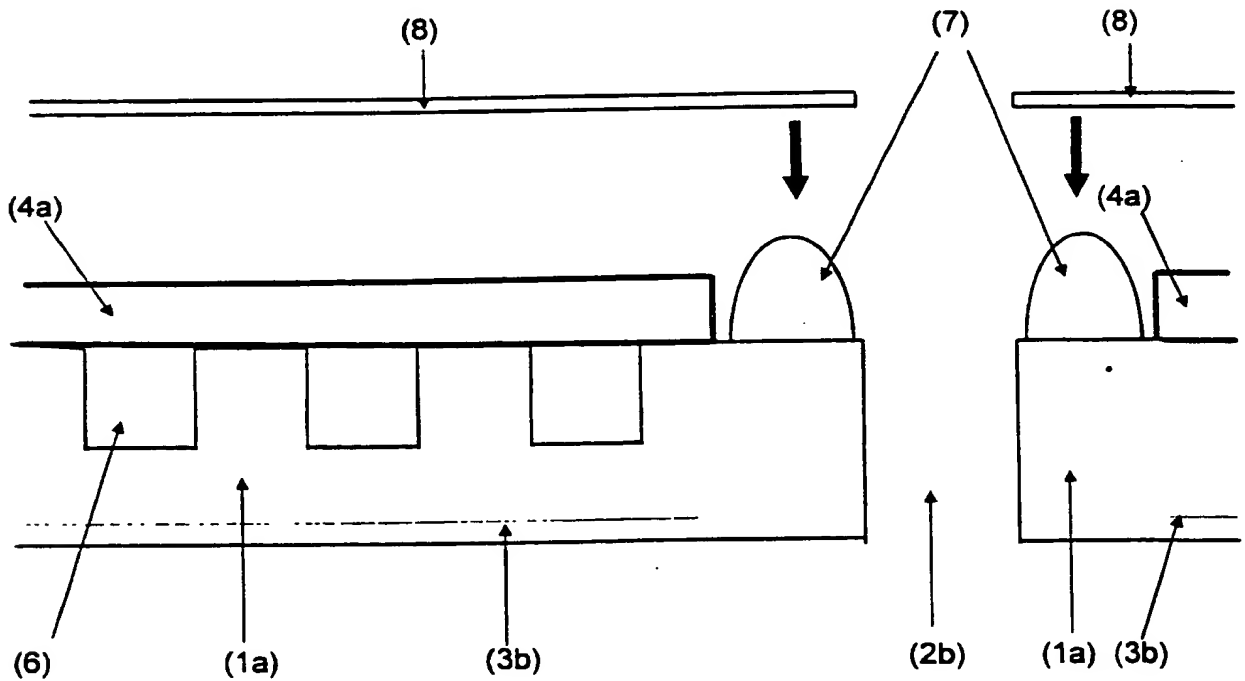
**Fig.1**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**Fig.2**

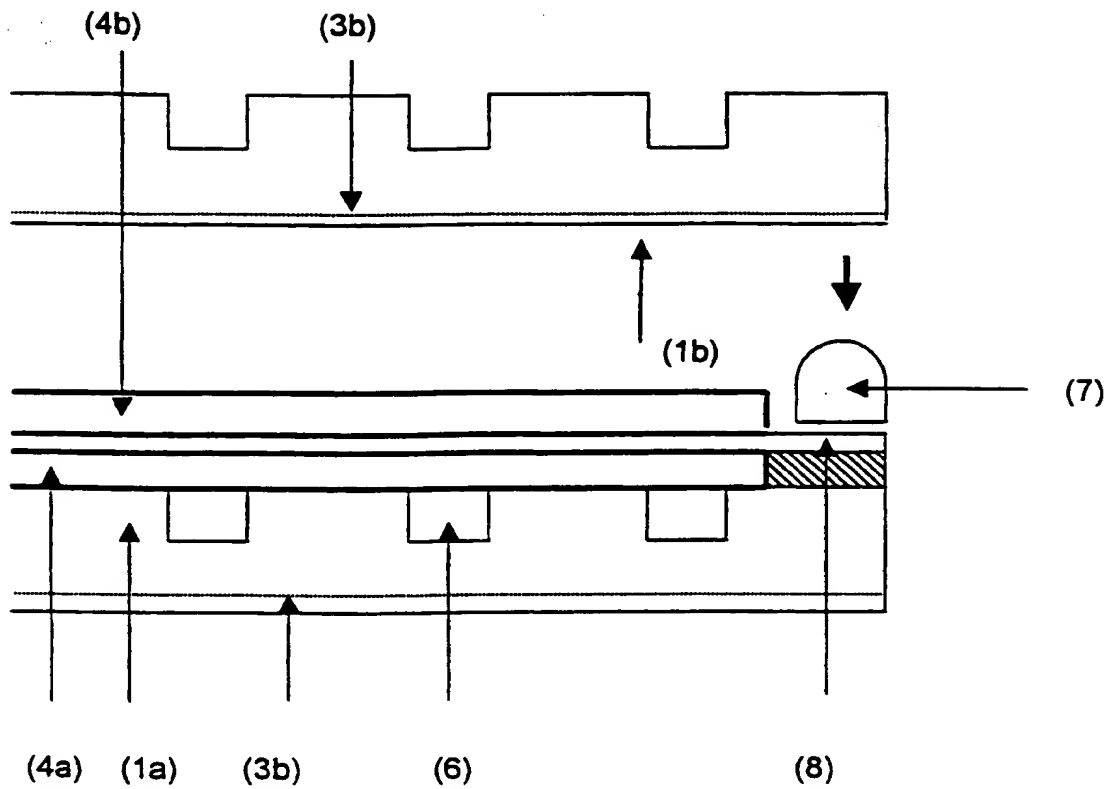


**Fig.3**

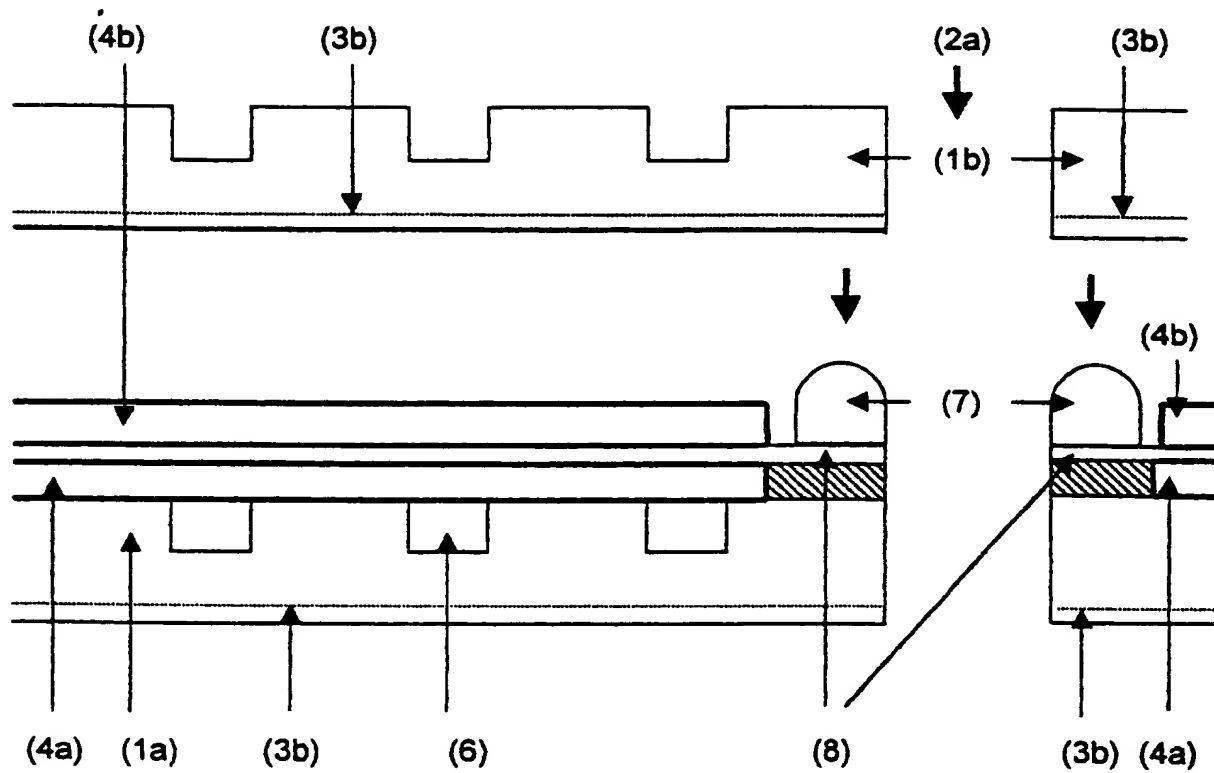


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**Fig.4**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**Fig.5**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**